

LE JOURNAL DE PHYSIQUE

ET

LE RADIUM

INDICES DE RÉFRACTION DANS L'ULTRA-VIOLET

Par M. MAURICE BAYEN ⁽¹⁾.

Sommaire. — Nous avons indiqué une méthode pour la détermination des indices de liquides dans l'ultra-violet; c'est un perfectionnement de celle de Duclaux et Jeantet. Comme toutes les méthodes de prisme, elle a en particulier l'avantage d'opérer à une température bien connue.

La méthode a été appliquée d'abord à l'eau ordinaire et à l'eau lourde pour lesquelles nous avons donné des formules de dispersion.

On a mesuré ensuite les indices de solutions aqueuses de diverses solutions de chlorures et de bromures alcalins.

Une discussion des résultats relatifs aux solutions électrolytiques a porté sur deux points : 1° les coefficients d'extinction des solutions, que la théorie électromagnétique relie aux indices de réfraction; 2° la réfraction moléculaire des solutions. Cette discussion montre nettement que les ions de l'électrolyte sont déformables et que cette déformation augmente avec la concentration.

Le nombre des mesures d'indice de réfraction et de dispersion effectuées pour la lumière visible est très considérable. Les différents types d'appareils ont été souvent décrits et la précision des méthodes discutée en détail. Les techniques modernes permettent en principe de déterminer les valeurs des indices d'un solide ou d'un liquide avec une précision d'une unité de la septième décimale de la valeur absolue de l'indice.

Des études systématiques ont été entreprises par bien des physiciens et des chimistes et les données sur les indices et les dispersions de la plupart des solides, des liquides et des gaz sont en nombre suffisant pour permettre des contrôles par comparaison.

Il n'en est pas de même dans le domaine des radiations invisibles : il y a peu de données sur les indices correspondant aux parties infra-rouge et ultra-violet du spectre.

Nous avons réalisé un montage permettant des mesures dans le proche infra-rouge accessible aux procédés photographiques, dans le visible et dans l'ultra-violet jusqu'à la limite de transparence des corps que nous avons examinés.

⁽¹⁾ Résumé d'une Thèse présentée à la Faculté des Sciences de Paris en 1941.

A. Description du montage que nous avons utilisé. — Pour la mesure des indices de réfraction des liquides dans l'ultra-violet, certains auteurs ont utilisé des méthodes fondées sur l'étude de la déviation produite par un prisme ou par un système de prismes [1], [2], [3], [4], [5]; d'autres ont utilisé le phénomène de la réflexion totale [6], [7], ou encore des méthodes interférentielles [7].

Les méthodes élégantes utilisant le phénomène de la réflexion totale, avantageuses pour le chimiste qui dispose souvent de peu de liquide, ont le grand inconvénient de ne pas permettre, en général, une détermination précise de la température des corps étudiés. La méthode du prisme creux est préférable; elle permet, avec des précautions moindres, d'opérer dans des conditions mieux connues.

a. PRINCIPE. — Le montage que nous avons utilisé est un perfectionnement de celui qu'avaient employé MM. Duclaux et Jeantet [8] pour la détermination des indices de l'eau.

Dans un spectrographe constitué par un collimateur et un objectif parfaitement achromatiques et par un prisme creux à liquide fermé par des lames à faces parallèles, la position d'une image spectrale donnée par une radiation déterminée dépend uniquement de l'indice du liquide pour cette radiation.

On peut donc établir une correspondance entre cet indice et l'abscisse de l'image spectrale par rapport à un repère fixe pris sur la plaque.

L'étalonnage s'effectue en utilisant une radiation visible, le prisme étant successivement rempli de liquides dont on a au préalable déterminé les indices pour cette radiation au moyen d'un réfractomètre.

L'indice d'un liquide quelconque pour une radiation ultra-violette se déduit alors de la distance du repère à l'image spectrale qui correspond à cette radiation.

b. RÉALISATION. — Devant l'impossibilité d'obtenir des lentilles parfaitement achromatiques, MM. Duclaux et Jeantet supprimaient le collimateur et l'objectif du spectrographe et limitaient les faisceaux par des fentes étroites, procédé qui a l'inconvénient de conduire à un appareil peu lumineux.

Dans notre montage, collimateur et objectif sont constitués par des miroirs sphériques (fig. 1).

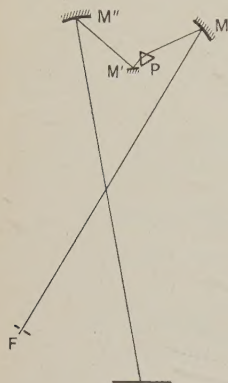


Fig. 1.

Un miroir sphérique M transforme par réflexion les faisceaux issus d'une fente F en faisceaux parallèles (en première approximation). Ceux-ci traversent le prisme P, et, par un miroir plan M' constituant avec P un système à déviation constante, sont renvoyés sur un miroir sphérique M'' qui donne des images de la fente correspondant aux diverses radiations de la lumière venant de F.

c. DÉTAILS SUR LE MATÉRIEL OPTIQUE. — 1° Les miroirs M, M', M'' ont des surfaces qui ont été optiquement réalisées au $1/4$ de frange; ils ont été recouverts d'une couche réfléchissante d'aluminium.

2° L'ensemble du prisme et du miroir plan M' constitue un système à déviation constante. Le prisme est obtenu en collant sur un bloc de verre représenté figure 2, au moyen de picéine dans le cas de liquide aqueux, ou de solution de sucre dans le cas de liquide organique, des lames de quartz taillées parallèlement à l'axe, de 4 cm de côté, dont la planéité et le parallélisme des faces particulièrement importants étaient réalisés au quart de frange.

Le prisme est fixé sur une petite plate-forme à trois vis calantes. Le miroir M est supporté par le dispositif à quatre vis bien connu permettant l'orientation et la fixation. L'ensemble du support de M' et de la plate-forme du prisme repose sur un secteur triangulaire mobile autour d'un axe vertical réalisé au moyen d'un rodage conique. Le poids du support

de M', de la plate-forme et du prisme est équilibré par un poids de plomb. Le centre de gravité de l'ensemble est alors voisin de l'axe de rotation.

3° Le châssis porte-plaque est en bois, à rideau mobile dans un plan vertical, entre deux glissières fixées sur une plaque de laiton p de 18 cm de long et 1 cm de large, destinée à limiter la hauteur des images spectrales. La plaque p est elle-même fixée sur une plate-forme rectangulaire horizontale qu'on peut déplacer par rapport au miroir M' ou faire tourner. Le réglage de la plaque est obtenu par les méthodes de tâtonnement systématiques utilisées pour les spectrographes.

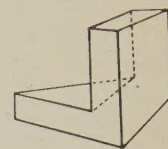


Fig. 2.

4° L'ensemble des pièces précédentes est installé sur un châssis rigide rectangulaire de 100 cm \times 50 cm, constitué par des fers cornière soudés à l'autogène et rabotés. L'ensemble est protégé de la lumière extérieure par une boîte en bois, et pour éviter les lumières parasites, plusieurs diaphragmes ont été convenablement interposés sur le trajet des faisceaux.

5° Enfin, pour pouvoir mesurer les indices à diverses températures, nous avons placé dans une boîte des fils de nichrome à peu près régulièrement répartis, dans lesquels on faisait passer un courant. Quand la température obtenue dépasse de quelques degrés la température t à laquelle on veut faire une mesure, on interrompt le courant, et l'on attend que la température intérieure soit égale à t . On note la température avant et après l'enregistrement : même pour les poses les plus longues, la variation de température n'a pas excédé $1/10^e$ de degré au cours d'un enregistrement.

d. SOURCES DE LUMIÈRE. — Nous avons utilisé un arc au mercure en quartz du type Bruhat, des étincelles condensées dans l'air entre tiges de différents métaux (cuivre, argent, cadmium, aluminium et zinc), une lampe à vapeur de sodium. L'image de la source était projetée sur la fente au moyen d'un condenseur achromatique quartz fluorine collé à la glycérine.

e. PLAQUES PHOTOGRAPHIQUES. — Pour l'étude concernant les radiations ultra-violettes, nous nous sommes servi de plaques ordinaires à grande sensibilité (type Lumière étiquette mauve) que nous avons sensibilisées pour l'ultra-violet lointain en les plongeant dans une solution d'huile de vaseline ou même d'huile de machine ordinaire dans du tétrachlorure de carbone.

Pour les radiations visibles, nous avons utilisé des plaques panchromatiques.

Pour les radiations infra-rouge, nous nous sommes servis de plaques spéciales Guillemot et Agfa.

f. RÉGLAGES. — La distance de la fente au miroir M était réglée par auto-collimation.

L'inclinaison de l'arête du prisme était obtenue en faisant tourner le secteur qui portait le système à déviation constante de façon à placer successivement les deux faces du prisme normalement au faisceau réfléchi par le miroir M et en observant la lumière réfléchie par les deux lames.

L'orientation du prisme était déterminée en le remplissant d'eau, en éclairant la fente avec la lumière jaune d'un arc au sodium; en recevant les rayons sortant du prisme sur une lunette et en faisant tourner le secteur jusqu'à observer le minimum de déviation. Le miroir M' était mis en place et son orientation réglée de façon à faire tomber le faisceau sur M". Ce dernier miroir était alors orienté de façon à faire converger les rayons dans la partie médiane de la plaque photographique. Si l'eau du prisme est remplacée par un autre liquide, et si par une rotation convenable du système à déviation constante nous amenons l'image de la fente correspondant à une radiation quelconque à se former au milieu de la plaque, nous serons assurés que le prisme est au minimum de déviation pour cette radiation.

g. ÉTALONNAGES. — Les étalonnages ont été réalisés en éclairant la fente au moyen d'une lampe à vapeur de sodium et en plaçant dans le prisme des liquides dont nous avons préalablement déterminé les indices au moyen d'un bon goniomètre de Brünner et d'un réfractomètre de Pulfrich. Une attention très spéciale était portée sur l'égalité des températures des liquides placés dans le prisme du goniomètre Brünner et dans le prisme de l'appareil à étalonner.

La position d'une raie sur la plaque était déterminée par sa distance à un repère fixe qui était obtenu en projetant sur la plaque l'image d'une fente auxiliaire F', éclairée en lumière blanche au moyen d'une ampoule de lampe de poche. Les distances des diverses raies au repère étaient mesurées au moyen d'une machine à diviser.

Les résultats des mesures effectuées sur la plaque d'étalonnage étaient rassemblés dans un tableau : dans une colonne, on inscrivait les distances d des raies du repère, dans une autre les valeurs correspondantes de l'indice. En représentant ces résultats par un graphique, on constatait que les points obtenus se disposaient régulièrement sur une courbe très peu différente d'une droite, qu'on pouvait représenter par une formule à trois termes :

$$n = a + bd + cd^2.$$

Pour chaque plaque d'étalonnage, on établissait une formule de ce genre.

Connaissant la distance d'une raie au repère, on peut ainsi calculer l'indice correspondant. En admettant une précision de $1/100^e$ de millimètre dans la mesure de la distance d'une raie au repère,

on peut conclure à la possibilité de constater des variations d'indice de l'ordre de 7.10^{-6} . La précision de notre montage pour la mesure absolue des indices était donc limitée non par la dispersion du spectrographe; mais par la sensibilité du réfractomètre.

Les remarques précédentes et la comparaison des résultats correspondant à un même corps, mais obtenus dans des conditions différentes, permettent de conclure que les valeurs de nos indices sont correctes à quelques unités près de la cinquième décimale.

h. INFLUENCE DE LA DILATATION DU SPECTROGRAPHE. — Sauf dans le cas de l'étude des variations des indices de l'eau en fonction de la température, nous n'avons eu que des variations de température de quelques degrés. La dilatation de l'appareil ne peut donc pas être considérée comme limitant la précision de nos mesures.

Dans le cas de l'eau, pour les températures extrêmes, nous saurons qu'il y a incertitude sur le chiffre de la cinquième décimale.

B. Étude de l'eau. — La variation de l'indice de l'eau en fonction de la température a été étudiée par un grand nombre de physiciens pour les radiations visibles. Les résultats des différents chercheurs ne présentent pas toujours la concordance que l'on serait en droit d'attendre de la précision qu'ils annoncent en discutant leurs méthodes.

Le travail le plus récent et le plus complet à notre connaissance est celui de Leroy W. Tilton et John K. Taylor [10]. Ces auteurs ont déterminé les indices pour treize longueurs d'onde comprises entre 7065 et 4046 angströms et pour treize températures comprises entre 0 et 60° C. Ils employaient la méthode du minimum de déviation. Le prisme creux de 72° était en nickel, fermé par des lames de verre. Le cercle soigneusement étudié permettait d'apprécier une fraction de seconde. La température était déterminée par un thermomètre à résistance de platine. Les auteurs donnent une table des indices avec sept décimales et représentent leurs résultats par une formule compliquée, à treize constantes.

La comparaison de leurs nombres avec ceux de M^{lle} Jasse [11] qui a utilisé une méthode interférométrique permettant d'espérer atteindre la sixième décimale pour la valeur de l'indice montre, à la température de 21°,44, des différences de l'ordre de 19 unités de la sixième décimale. Il est d'ailleurs à remarquer que la connaissance de la septième décimale de l'indice de l'eau suppose une température définie, constante et uniforme en tous les points du liquide à $1/1000^e$ de degré C. près, ce qui semble difficilement réalisable avec certitude.

Signalons enfin que la dispersion ultra-violet de l'eau a été étudiée par Simon, Martens, Flatow, Duclaux et Jeantet.

MESURES. — Nous avons fait deux séries de mesures sur l'eau distillée (obtenue par distillation très lente d'eau distillée ordinaire dans un ballon en pyrex chauffé électriquement), l'une pour des longueurs d'onde comprises entre 2500 et 5893 Å et des températures comprises entre 17 et 35° C., l'autre pour des longueurs d'onde comprises entre 1930 et 2600 Å et des températures comprises entre 6 et 30° C.

Les variations de température dans la première série de mesures étaient obtenues par chauffage électrique de tout l'appareil. Plusieurs heures avant chaque mesure le courant de chauffage était interrompu. L'appareil se refroidissait très lentement. La variation de température du liquide en expérience n'excédait jamais 1/10° de degré au cours d'un enregistrement photographique.

La deuxième série de mesures a été faite en hiver dans une salle non chauffée.

RÉSULTATS. — Nous avons comparé les résultats correspondant à la température de 20° C. à ceux de Flatow [3] et à ceux de Duclaux et Jeantet [8]. Les nombres de Duclaux et Jeantet sont systématiquement supérieurs à ceux de Flatow; entre 3000 et 4000 Å la différence est d'environ deux unités de la quatrième décimale; au-dessous de 3000 Å elle est de quatre unités de la quatrième décimale. Les nombres que nous avons trouvés sont généralement inférieurs à ceux de Flatow et en diffèrent de plusieurs unités de la cinquième décimale. La formule

$$n^2 = 1,755819 + \frac{2,63677 \cdot 10^{-3}}{\lambda^2 - 0,023000} + \frac{4,4782 \cdot 10^{-3}}{\lambda^2 - 0,0014375} \quad (\lambda \text{ en } \mu) \quad (1)$$

a été obtenue en utilisant les nombres qui correspondent aux longueurs d'onde 5893, 3027 et 2145 Å. Elle représente assez bien la dispersion de l'eau à 20° C. Les différences entre les nombres calculés et les nombres mesurés sont de quelques unités de la cinquième décimale pour des longueurs d'onde comprises entre 5800 et 2600 Å; elles atteignent dans quelques cas trois unités de la quatrième décimale pour des longueurs d'onde inférieures à 2600 Å. Nous n'avons pas fait de mesures pour des longueurs d'onde comprises entre 1930 et 1800 Å, mais nous avons comparé les résultats donnés par notre formule à ceux des mesures de Duclaux et Jeantet; les écarts sont de l'ordre de grandeur indiqués ci-dessus.

VARIATION DE L'INDICE EN FONCTION DE LA TEMPÉRATURE. — Duclaux et Jeantet indiquent que la variation d'indice passe par un maximum pour $\lambda = 2000$ Å. Les tableaux de nombres de Flatow et ceux que nous publierons ultérieurement montrent que $\frac{\Delta n}{\Delta t}$ croît d'environ un quart de sa valeur quand λ varie de 5900 à 2700 Å et reste sensible-

ment constant quand λ varie de 2700 à 2000 Å. Notre tableau montre également que $\frac{\Delta n}{\Delta t}$ décroît quand λ varie de 2000 à 1930 Å.

Comme $\frac{\Delta n}{\Delta t}$ dépend peu de λ , nous avons d'abord représenté les résultats précis obtenus par M^{lle} Jasse [11], correspondant, à la radiation 5790 Å, par la formule simple

$$n = 1 + \frac{n_{20} - 1}{1 + 26,1(t - 20) \cdot 10^{-5} + 0,552(t - 20)^2 \cdot 10^{-8}},$$

où t représente la température centigrade. Entre 0 et 39° C., les différences entre ces nombres calculés et les nombres donnés par M^{lle} Jasse sont de l'ordre d'une unité de la cinquième décimale. Pour étendre cette formule au spectre ultra-violet, nous utilisons la remarque faite ci-dessus, que $\frac{\Delta n}{\Delta t}$ varie du quart de sa valeur quand λ varie de 5900 à 2700 Å en tendant vers un maximum. La formule

$$n = 1 + \frac{n_{20} - 1}{\left\{ 1 + [26,1(t - 20) \cdot 10^{-5} + 0,552(t - 20)^2 \cdot 10^{-8}] \right\} \times [1 + 1,39(0,59 - \lambda) - 1,93(0,59 - \lambda)^2] \right\}}$$

et la formule (1) permettent de calculer l'indice de l'eau correspondant à une longueur d'onde comprise entre 5900 et 1930 Å et à une température comprise entre 6 et 35° C. L'écart entre les nombres calculés et les nombres mesurés est de quelques unités de la cinquième décimale pour les longueurs d'onde supérieures à 2600 Å et de deux ou trois unités de la quatrième décimale pour des longueurs d'onde inférieures à 2500 Å. Ces écarts sont dus principalement à l'emploi de la formule (1).

TABLEAU I. — Indices de l'eau.

λ	17°,7.	20°,6.	21°,4.	23°,6.	27°,7.	35°,5.
5790,65	1,33351	1,33326	1,33318	1,33299	1,33267	1,333157
5460,73	1,33466	1,33441	1,33443	1,33412	1,33368	1,33270
4916,00	1,33699	1,33676	1,33673	1,33646	1,33592	1,33506
4358,33	1,34039	1,34010	1,34006	1,33982	1,33926	1,33838
4046,50	1,34286	1,34263	1,34258	1,34233	1,34178	1,34091
3663,27	1,34700	1,34674	1,34669	1,34644	1,34589	1,34502
3650,28	1,34715	1,34691	1,34686	1,34660	1,34604	1,34522
3341,47	1,35172	1,35149	1,35141	1,35116	1,35063	1,34978
3131,84	1,35578	1,35555	1,35549	1,35522	1,35468	1,35382
3125,66	1,35590	1,35570	1,35564	1,35536	1,35481	1,35397
3027,48	1,35821	1,35801	1,35793	1,35760	1,35711	1,35627
3021,50	1,35833	1,35813	1,35805	1,35777	1,35725	1,35639
2967,28	1,35975	1,35953	1,35943	1,35920	1,35864	1,35780
2925,40	1,36088	1,36065	1,36059	1,36033	1,35973	1,36010
2893,60	1,36183	1,36156	1,36150	1,36122	1,36065	1,35986
2803,48	1,36462	1,36438	1,36430	1,36402	1,36346	1,36264
2698,85	1,36837	1,36812	1,36803	2,36781	1,36719	1,36637
2655,13	1,37008	1,36981	1,36975	1,36954	1,36908	1,36803
2652,14	1,37022	1,37000	1,36988	1,36966	1,36920	1,36819

TABLEAU II. — *Indices de l'eau.*

λ .	6°,6.	9°,8.	11°,7.	13°,5.	16°,5.	19°,5.	21°,6.	23°,6.	27°,3.	30°,9.
1916	1,44039	1,44023	1,44013	1,44007	1,43991	1,43968	1,43941	1,42921	1,43883	1,43847
1930	1,43629	1,43613	1,43603	1,43597	1,43581	1,43558	1,43531	1,43511	1,43473	1,43435
1945	1,43421	1,43405	1,43395	1,43389	1,43373	1,43350	1,43323	1,43303	1,42165	1,42129
1990	1,42608	1,42592	1,42580	1,42574	1,42548	1,42525	1,42498	1,42478	1,42440	1,42404
1993	1,42542	1,42526	1,42516	1,42510	1,42494	1,42471	1,42444	1,42424	1,42386	1,42350
2000	1,42425	1,42409	1,42399	1,42393	1,42377	1,42354	1,42327	1,42307	1,42269	1,42233
2015	1,42180	1,42164	1,42154	1,42146	1,42120	1,42096	1,42061	1,42035	1,41990	1,41949
2033	1,41909	1,41893	1,41880	1,41872	1,41852	1,41822	1,41787	1,41761	1,41716	1,41675
2035	1,41873	1,41857	1,41844	1,41836	1,41816	1,41786	1,41751	1,41725	1,41685	1,41644
2037	1,41860	1,41844	1,41831	1,41823	1,41803	1,41773	1,41738	1,41712	1,41667	1,41626
2043	1,41764	1,41748	1,41735	1,41727	1,41707	1,41677	1,41642	1,41616	1,41571	1,41530
2054	1,41604	1,41588	1,41575	1,41567	1,41547	1,41517	1,41482	1,41456	1,41411	1,41370
2065	1,41454	1,41448	1,41425	1,41418	1,41400	1,41370	1,41335	1,41309	1,41264	1,41223
2113,8	1,40870	1,40854	1,40841	1,40833	1,40817	1,40787	1,40752	1,40726	1,40681	1,40640
2114	1,40848	1,40832	1,40828	1,40820	1,40800	1,40770	1,40735	1,40709	1,40654	1,40613
2134	1,40594	1,40578	1,40565	1,40557	1,40537	1,40507	1,40472	1,40446	1,40401	1,40360
2145,6	1,40488	1,40472	1,40459	1,40451	1,40431	1,40401	1,40366	1,40340	1,40295	1,40254
2186	1,40059	1,40043	1,40030	1,40028	1,40008	1,39978	1,39943	1,39917	1,39872	1,39836
2229,51	1,39657	1,39640	1,39627	1,39619	1,39599	1,39569	1,39534	1,39508	1,39463	1,39422
2248,73	1,39487	1,39471	1,39458	1,39450	1,39430	1,39400	1,39365	1,39336	1,39291	1,39250
2279,97	1,39227	1,39211	1,39198	1,39190	1,39170	1,39140	1,39105	1,39079	1,39034	1,38993
2317,0	1,38941	1,38925	1,38912	1,38904	1,38884	1,38854	1,38819	1,38793	1,38748	1,38707
2331,35	1,38834	1,38818	1,38805	1,38797	1,38777	1,38747	1,38712	1,38686	1,38641	1,38600
2358,95	1,38640	1,38624	1,38611	1,38603	1,38583	1,38553	1,38518	1,38492	1,38447	1,38406
2411										
2413	1,38285	1,38269	1,38256	1,38248	1,38228	1,38198	1,38163	1,38137	1,38092	1,38051
2437,77	1,38137	1,38120	1,38107	1,38099	1,38079	1,38046	1,38011	1,37985	1,37940	1,37899
2447,91	1,38075	1,38059	1,38046	1,38036	1,38015	1,37972	1,37937	1,37911	1,37866	1,37825
2473,1	1,37927	1,37910	1,37897	1,37889	1,37869	1,37836	1,37801	1,37775	1,37730	1,37689
2506,65	1,37752	1,37736	1,37723	1,37715	1,37695	1,37665	1,37630	1,37604	1,37559	1,37518
2535,3	1,37600	1,37583	1,37570	1,37562	1,37542	1,37509	1,37474	1,37448	1,37403	1,37362
2580,7	1,37381	1,37364	1,37351	1,37343	1,37323	1,37290	1,37255	1,37229	1,37184	1,37143
2606,14	1,37265	1,37249	1,37236	1,37228	1,37208	1,37175	1,37140	1,37114	1,37069	1,37028
2614,5	1,37225	1,37208	1,37195	1,37187	1,37167	1,37134	1,37099	1,37073	1,37028	1,36987

Le tableau I donne les indices de l'eau entre 17° C. et 35° C. pour les radiations comprises entre 2500 et 5790 Å.

Le tableau II donne les indices de l'eau entre 6° et 30° C. pour les radiations comprises entre 1916 et 2614 Å.

Ces indices, ainsi que ceux des tableaux qui suivent, sont pris par rapport à l'air, l'air étant à la température du liquide.

C. Étude de l'eau lourde. — Dans ce cas, pour étalonner l'appareil nous nous sommes servi des indices de l'eau pure ordinaire déterminés précédemment. Nous avons placé de l'eau bidistillée

ordinaire dans le prisme creux, nous avons noté sa température, et en éclairant successivement la fente du spectrographe avec l'arc au mercure et avec des étincelles condensées entre tiges d'argent, nous avons obtenu sur une série de clichés les spectres du mercure et de l'argent. La connaissance des indices de l'eau pure correspondant aux longueurs d'onde enregistrées permettait d'établir une relation entre l'indice correspondant à une raie et sa distance au repère fixe photographié en même temps que le spectre.

Nous pouvions ensuite obtenir directement les indices correspondant à l'eau lourde en remplaçant l'eau ordinaire par de l'eau lourde et en enregistrant les

spectres obtenus avec les sources ci-dessus indiquées.

L'avantage de cette méthode est de donner pour les différences entre les indices de l'eau et les indices de l'eau lourde des nombres qui seraient corrects même si les résultats relatifs à l'eau ordinaire présentaient des erreurs systématiques.

Nos mesures ont porté sur 36 longueurs d'onde dans un intervalle compris entre 2229 et 5790 Å pour de l'eau lourde à 99,2 pour 100 de D²O à la température de 18°,9 C.

La dispersion de l'eau lourde avait été étudiée entre 4358 et 6563 Å par Luten [12], et l'indice pour la raie D mesuré par Lewis [13].

Nous avons comparé les résultats de cet auteur et les nôtres pour les longueurs d'onde 5461 et 5790 Å. Comme les conditions de température correspondant aux mesures de Luten et aux nôtres différaient de 1°,1, nous avons fait subir aux résultats de Luten une correction un peu arbitraire en admettant pour coefficient de variation d'indice de l'eau lourde en fonction de la température à 20° la même valeur que pour le coefficient correspondant de l'eau ordinaire. Même si cette valeur est inexacte elle n'introduit pas d'erreur considérable puisqu'il s'agit d'une variation de température faible.

TABLEAU III.

Indices de l'eau lourde à la température de 18°,9.

λ .	n .	Δ .	λ .	n .	Δ .
5790,65	1,32873	0	2655,13	1,36301	
5769,59	1,32881		2654	1,36307	
5460,73	1,32977	-6	2652,14	1,36314	+2
4916			2576	1,36628	
4358,33	1,33494	-16	2536,52	1,36817	-10
4077,71	1,33744		2483,33	1,37078	
4046,50	1,33855		2473	1,37124	+1
3655	1,34114	+1	2447	1,37264	
3650,28	1,34130		2437	1,37320	
3341,47	1,34563	+2	2413	1,37416	
3131,84	1,34949	+3		1,37471	
3125,66	1,34661		2391	1,37596	
3021,50	1,35192	0	2357	1,37812	
2967,28	1,35324	+2	2331	1,37979	+3
2893,60	1,35518	+4	2279	1,38380	
2803,48	1,35784	+4	2248	1,38598	+11
2752,77	1,35948	+4		1,38618	
2698,55	1,36136		2229	1,38759	

Cette comparaison nous a montré des écarts de quelques unités de la cinquième décimale.

Nous avons représenté les résultats par une formule du même type que celle de l'eau distillée ordinaire en conservant les fréquences qui caractérisent l'absorption. La formule

$$n^2 = 1,74529 + \frac{2,63677 \cdot 10^{-3}}{\lambda^2 - 0,02300} + \frac{3,9384 \cdot 10^{-3}}{\lambda^2 - 0,0014375}$$

ne diffère de celle que nous avons donnée pour l'eau que par deux constantes. Elle permet de calculer les indices de l'eau lourde dans l'intervalle de longueur d'onde que nous avons utilisé avec une précision qui dans les cas les plus défavorables est de 15 unités du cinquième ordre et qui est généralement de quelques unités de cet ordre.

Le tableau III donne les valeurs des indices mesurées et les différences entre les valeurs calculées et les valeurs mesurées.

D. Solutions électrolytiques. — a. HISTORIQUE.

— Les propriétés optiques des solutions électrolytiques ont fait l'objet d'un grand nombre de travaux.

Chéneveau [15] a été l'un des premiers à étudier la variation de l'indice de réfraction de telles solutions en fonction de la concentration. Il a observé une nombreuse série de corps, mais sa technique optique ne lui donnait que la quatrième décimale de la valeur de l'indice. Cette précision est insuffisante pour permettre des conclusions sur les lois qui régissent la solution.

Heydweiller [16] et ses collaborateurs dans une série de mémoires publiés de 1909 à 1920 ont donné les résultats de leurs mesures : et dans un article de synthèse en 1924, Heydweiller [17] a essayé de grouper l'ensemble de ces résultats et d'en tirer des conclusions sur les fréquences propres et les réfractions moléculaires.

Sauf les mesures de Lubben [4] pour l'ultra-violet, toutes ces mesures sont relatives au spectre visible.

La question a été reprise par Fajans [18] et ses collaborateurs qui ont perfectionné la technique réfractométrique pour la lumière visible et qui, à l'aide de leurs résultats précis, ont déterminé la variation de la réfraction moléculaire des sels en solution et l'ont interprétée.

Il nous a semblé intéressant de refaire dans l'ultra-violet quelques séries de mesures sur des chlorures et des bromures.

Avant d'étudier leurs propriétés optiques il fallait définir ces solutions d'une façon précise au point de vue chimique; et comme nous nous proposons aussi de calculer leurs réfractions moléculaires, nous devons déterminer leur masse spécifique.

b. TITRE DES SOLUTIONS. — La détermination du titre d'une solution en valeur absolue avec une grande précision présente des difficultés.

S'il s'agit d'un produit très peu hygroscopique, il semble qu'en dissolvant une quantité connue de ce produit dans une quantité déterminée d'eau on puisse espérer n'être limité dans la précision à attribuer au titre de la solution que par la précision de la balance. En réalité, que les corps soient cristallisés ou amorphes, il nous paraît dangereux d'affirmer

qu'il n'y a pas quelques dix-millièmes d'eau (en valeur relative) dans le produit utilisé.

Dans le cas d'un corps hygroscopique, le seul moyen de connaître le titre d'une solution est de la doser après préparation.

Pour doser les solutions après préparation on peut opérer par évaporation dans le vide ou par les méthodes d'analyse pondérales. L'un ou l'autre des procédés ne permet guère de dépasser la précision du millième en valeur relative pour le titre.

Les dosages des solutions que nous avons étudiées sont classiques, et nous ne jugeons pas utile de rapporter le détail des opérations que nous avons effectuées.

Les titres relatifs de solutions diversement concentrées d'une même substance sont au contraire connus avec une précision très supérieure. Pour chacun des corps que nous avons examinés nous avons préparé une solution mère S. En pesant une certaine quantité de la solution S, en lui ajoutant des quantités d'eau déterminées nous obtenions une série de solutions dont le titre par rapport à celui de S était connu avec toute la précision que permet la balance.

Toutes nos pesées ont été faites avec des balances Curie sensibles au moins au $1/10^6$ de milligramme. Les masses mesurées variant entre 10 et 150 g. La précision relative était donc de l'ordre de 10^{-5} dans le cas le plus défavorable.

Nous avions bien entendu vérifié les boîtes de poids que nous avons utilisées; l'une d'elles était en quartz, l'autre en laiton doré; et nous avons fait subir à nos pesées les habituelles corrections de poussée.

Nous préparions directement ces solutions dans des flacons bouchés à l'émeri et rodés que nous paraffinions dès que la pesée était terminée.

c. DÉTERMINATION DES MASSES SPÉCIFIQUES. — Quand nous disposions de peu de solution, nous nous servions d'un picnomètre Sprengel de petites

dimensions, d'un volume voisin de $7,2 \text{ cm}^3$, muni d'un thermomètre. Quand nous n'étions pas limités par la quantité de liquide, nous nous servions d'un gros picnomètre en pyrex d'un volume voisin de 100 cm^3 .

Les déterminations ont été faites, dans le premier cas, avec une précision de quelques unités de la cinquième décimale, dans le second cas avec une précision un peu supérieure.

d. DÉFINITION DES SOLUTIONS ET RÉSULTATS DES MESURES D'INDICES. — Les indices d'une solution aqueuse dépendent de la nature du corps dissous, de sa concentration et de la température. Pour rendre comparables entre eux les résultats correspondant à un même corps dissous, nous opérions à des températures peu différentes les unes des autres; et par correction nous rapportions les indices à la même température.

Nous nous bornons à indiquer ici les résultats obtenus avec les solutions de chlorure de sodium.

Nous donnons d'abord la valeur des concentrations que nous exprimons sous les différentes formes habituelles. Les notations sont les suivantes :

c , nombre de grammes de sel anhydre dans 1000 g de solution;

\mathcal{N} , nombre de molécules-grammes de sel anhydre dans 1000 g de solution;

τ , nombre de grammes de sel anhydre dans 1000 cm^3 de solution;

N , nombres de molécules-grammes de sel anhydre dans 1000 cm^3 de solution;

s , nombre de grammes de sel anhydre dans 1000 g d'eau;

N' , nombre de molécules-grammes de sel anhydre dans 1000 g d'eau.

Ces nombres se déduisent les uns les autres si l'on connaît la masse spécifique ϖ de chaque solution que nous indiquons dans le tableau.

TABLEAU IV. — Valeur des concentrations des solutions de ClNa .

Numéros.	ϖ .	$C.10^{-1}$.	\mathcal{N} .	$\tau.10^{-1}$.	$N.10^{-1}$.	$s.10^{-1}$.	N' .
1.....	1,1636	21,992	0,346188	25,5899	0,43773		
2.....	1,1427	19,336	0,330756	22,0952	0,377953	23,971	4,1002
3.....	1,1241	16,912	0,289291	19,0107	0,325191	20,354	3,4815
4.....	1,1036	14,266	0,244030	15,7439	0,269310	16,639	2,8461
5.....	1,0843	11,789	0,201659	12,7828	0,218658	13,364	2,2859
6.....	1,0652	9,268	0,158535	9,87227	0,168872	10,21	1,7471
7.....	1,0465	6,691	0,114454	7,00213	0,119776	7,708	1,2265
8.....	1,0250	3,736	0,063907	3,8294	0,065504	38,809	0,63828
9.....	1,0111	1,797	0,0307389	1,8169	0,031079	48,331	0,31355

Le tableau suivant donne les indices des solutions de chlorure de sodium pour différentes concentrations

et différentes longueurs d'onde. La figure 3 représente les résultats obtenus.

TABLEAU V. — *Indices des solutions de NaCl : t = 18°.*

	2. 19,336	3. 16,912	4. 14,266	5. 11,789	6. 9,268	7. 6,691	8. 3,736	9. 1,797
3280	1,39272	1,38762	1,38205	1,37687	1,37176	1,37131		
3012	1,40053	1,39513	1,38926	1,38385	1,37854	1,37224		
2938	1,40277	1,39743	1,39150	1,38601	1,38064	510		
2934	1,40293	1,39759	1,39148	1,38615	1,38077	530		
2929	1,40312	1,39776	1,39164	1,38632	1,38093	539		
2920	1,40345	1,39809	1,39195	1,38662	1,38143	569		
2900	1,40417	1,39878	1,39211	1,38717	1,38183	623		
2896	1,40433	1,39896	1,39296	1,38737	1,38202	643	1,36993	
2873	1,40523	1,39982	1,39379	1,38825	1,38280	717	1,37066	
2815	1,40763	1,40216	1,39605	1,39043	1,38489	920		1,36841
2799	1,40834	1,40284	1,39669	1,39106	1,38623	979	1,37435	1,36896
2767	1,40978	1,40428	1,39805	1,39238	1,38677	1,38100	477	1,37010
2756	1,41031	1,40474	1,39851	1,39283	1,38722	143	523	051
2712	1,41247	1,40683	1,40054	1,39479	1,38911	324	721	218
2681	1,41405	1,40837	1,40203	1,39627	1,39040	455	772	339
2660	1,41518	1,40946	1,40309	1,39733	1,39146	551	863	434
2656	1,41536	1,40964	1,40325	1,39722	1,39168	568	878	428
2614	1,41777	1,41197	1,40550	1,39955	1,39371	767	1,38070	628
2600	1,41828	1,41246	1,40648	1,40001	1,39473	810	1,38109	666
2580	1,41984	1,41397	1,40742	1,40140	1,39550	940	233	786
2535	1,42280	1,41683	1,41017	1,40405	1,39588	1,39184	467	1,38012
2507	1,42482	1,41876	1,41232	1,40584	1,39975	350	623	163
2481	1,42676	1,42062	1,41381	1,40756	1,40162	507	774	309
2477	1,42699	1,42085	1,41404	1,40777	1,40184	527	790	325
2474	1,42726	1,42110	1,41429	1,40802	1,40209	550	822	347
2447	1,42928	1,42306	1,41615	1,40983	1,40357	715	972	499
2437	1,43012	1,42385	1,41691	1,41055	1,40427	782	1,39026	560
2429	1,43079	1,42450	1,41754	1,41108	1,40487	1,39836	1,38610	1,39089
2413	1,43219	586	882	239	604	956	726	209
2411	233	601	895	253	617	964	1,38726	222
2359	714	1,43064	1,42339	677	1,41020	1,40351	084	577
2358	725	073	347	687	029	360	1,39090	585
2331	992	329	604	919	252	573	285	787
-	1,44062	395	658	981	311	629	336	838
-	110	439	702	1,42022	350	665	370	873
-	145	473	733	052	379	692	393	900
2254	877	978	407	700	1,41095	280	921	448
2249	941	238	461	750	1,42040	325	963	498
2246	970	268	489	770	065	347	986	516
2230	1,45191	476	691	959	246	517	1,40207	677
-	749	1,45060	1,44245	1,43484	677	1,41518		
2172	1,46050	298	466	699	887	1,41728	851	296
2167	119	363	531	757	1,43006	990	905	345
2162	193		595	823	1,43066	1,42232	976	396
2146	469	696	846	1,44056	290	498	1,41010	597
2134	592	816	959	165	389	591	093	689
2114	1,47049	1,46251	1,45367	554	751	933	391	1,42001
2102	278	463	574	746	965	1,43102	540	165
2100	326	507	616	784	974	136	569	197
2064			1,46179	1,45437	1,44586	705	1,42059	718
2062			358	479	627	758	095	752

E. Discussion des résultats relatifs aux solutions électrolytiques. — *a.* INDICE DE RÉFRACTION ET COEFFICIENT D'EXTINCTION. — La théorie électromagnétique de la dispersion permet d'établir entre l'indice de réfraction et le coefficient d'absorption χ d'une substance correspondant à la longueur d'onde λ la relation

$$n^2 \chi = \Sigma N \cdot A.$$

N , étant le nombre de particules vibrantes d'une espèce déterminée contenues dans l'unité de volume du corps étudié.

A , étant une quantité qui dépend uniquement de la nature des particules vibrantes considérées; le signe Σ est étendu aux différentes espèces de particules présentes dans le corps étudié.

A , est d'ailleurs donné par la formule

$$A = \frac{4\pi e^2 p}{m} \frac{\omega \nu'}{(\omega_0^2 - \omega^2)^2 + \omega^2 \nu'^2},$$

où p désigne l'intensité de polarisation pour une particule (rapport entre l'intensité de polarisation et le nombre de particules par unité de volume).

ω_0 — est la pulsation propre de cette particule;

m — la masse de la particule;

ω — la pulsation de la lumière considérée;

ν' est donné par $\nu' = \frac{b}{m}$ où b désigne le coefficient de frottement qui intervient dans l'équation du mouvement d'une particule

$$m \frac{d^2 x}{dt^2} + b \frac{dx}{dt} + m \omega_0^2 = e H_x.$$

Soit χ le coefficient d'amortissement qui définit l'absorption du champ électrique par la formule

$$H = H_0 e^{-\frac{\omega n \chi l}{c}} e^{i\omega \left(t - \frac{nl}{c}\right)},$$

où c est la vitesse de la lumière dans le vide, n l'indice de réfraction de la substance pour la radiation considérée, l l'épaisseur de substance traversée par la lumière;

H_0 , la valeur maximum du champ électrique à l'entrée de la substance, H , sa valeur après un parcours dans une épaisseur l de substance.

Si l'on désigne par I_0 l'intensité d'une radiation lumineuse qui pénètre dans une substance absorbante et par I l'intensité de cette radiation après son passage à travers l'épaisseur l de la substance, on définit le coefficient d'absorption par la formule

$$I = I_0 e^{-\mu l}.$$

Or,

$$I = H_{\text{moyen}}^2.$$

D'où

$$I_0 e^{-\mu l} = H_0^2 e^{-\frac{2\omega n \chi l}{c}} \quad \text{et comme} \quad I_0 = H_0^2,$$

$$\mu = \frac{2\omega n \chi}{c} \quad \text{et} \quad \chi = \frac{c \mu}{2\omega n},$$

d'où

$$n^2 \chi = \frac{c}{2\omega} \mu n = a \mu n,$$

a , étant une constante pour une radiation donnée.

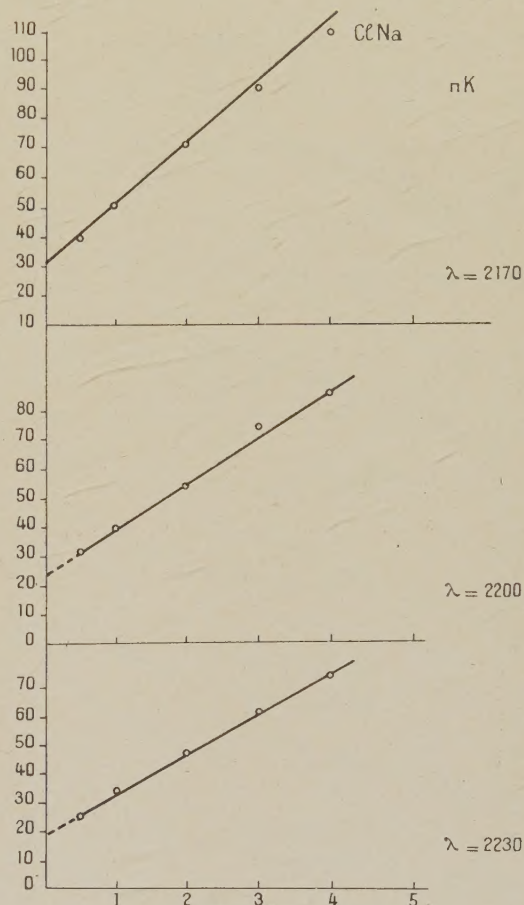


Fig. 3.

De même le coefficient d'extinction K défini par la formule

$$I_l = I_0 \cdot 10^{-Kl}$$

sera lié à $n^2 \chi$ par

$$n^2 \chi = \frac{c}{2\omega \times 0,434} Kn. \quad (2)$$

La comparaison des relations (1) et (2) montre que Kn est de la forme

$$Kn = \Sigma NB,$$

B , étant une constante qui se déduit facilement de A .

Dans une solution, en supposant des molécules et des ions indéformables, la quantité $n^2 \chi$ et par conséquent $n \mu$ ou NK s'exprimeront par une somme telle que

$$A_1 N_1 + A_2 N_2 + A_3 N_3 + \dots,$$

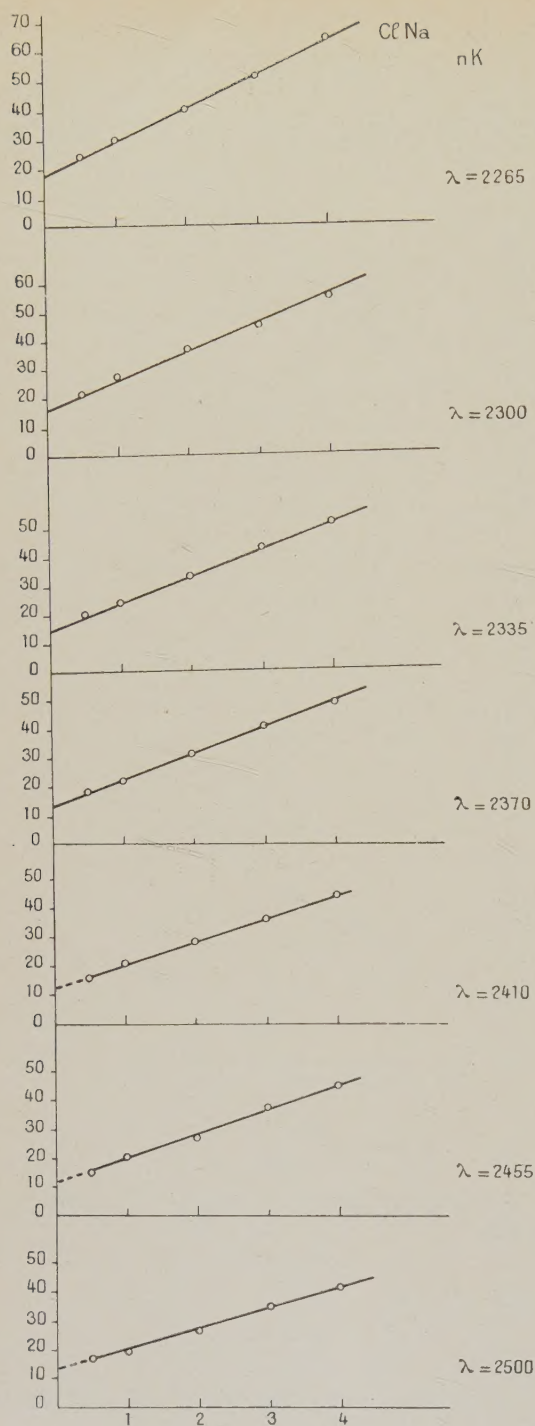


Fig. 4.

N_1, N_2, N_3, \dots étant les nombres d'ions d'espèce 1, 2, 3 contenus dans l'unité de volume de solution.

Si nous admettons une dissociation totale des électrolytes forts, dans le cas des chlorures que nous avons étudiés, N_1, N_2, N_3, \dots sont fonctions

linéaires de la quantité de sel contenu dans l'unité de volume de la solution. Donc les courbes représentant nK en fonction de la concentration doivent être droites.

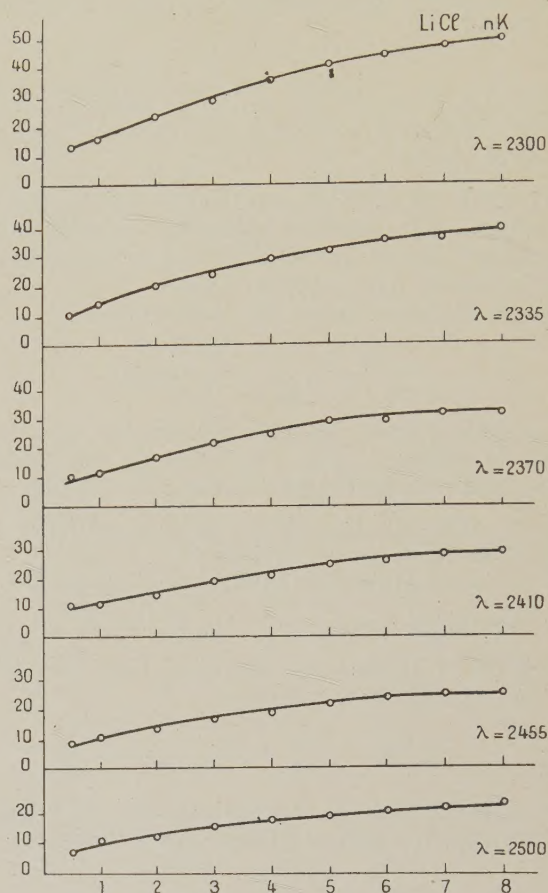


Fig. 5.

Nous avons dressé le tableau des produits nK pour le chlorure de sodium. Pour calculer ces produits nous avons utilisé les valeurs de K données par Tréhin [14], mais comme Tréhin donne seulement deux chiffres significatifs, les produits ne peuvent pas être définis avec une précision plus grande.

Ces résultats ont été représentés graphiquement (fig. 3 et 4) en portant les concentrations en abscisses et les valeurs de nK en ordonnées.

CONCLUSION. — Pour les solutions de chlorure de sodium, les courbes du produit nK sont sensiblement des droites, mais pour les solutions d'autres chlorures et notamment pour le chlorure de lithium (fig. 5), les courbes s'écartent des droites théoriques de quantités trop grandes pour être attribuées à des erreurs d'expériences.

TABLEAU VI. — Valeurs de nK pour ClNa.

Nombre de molécules.		2500.	2455.	2410.	2370.	2335.	2300.	2265.	2230.	2200.	2170.
5	n	1,46					1,44	1,45	1,45	1,46	1,47
4	n	1,42	1,43	1,43	1,43	1,44	1,44	1,45	1,45	1,46	1,47
	nK	40,4	43	46	49	52	56	65	73	85	108
3	n	1,42	1,42	1,42	1,42	1,43	1,43	1,44	1,45	1,45	1,45
	nK	33	36	37	40	43	46	52	61	73	90
2	n	1,41	1,41	1,41	1,42	1,42	1,42	1,42	1,43	1,43	1,44
	nK	25	27	29	31	33	36	40	46	54	71
1	n	1,39	1,39	1,40	1,40	1,40	1,41	1,41	1,41	1,41	1,42
	nK	18	19	21	22	24	27	30	34	40	51
0,5	n	1,38	1,38	1,39	1,39	1,40	1,40	1,40	1,40	1,41	1,41
	nK	15	15	17	18	20	21	24	25	32	40

En extrapolant les courbes jusqu'à la concentration 0, on devrait trouver la valeur du produit nK relatif à l'eau. Or, si l'on compare les courbes qui correspondent à une même longueur d'onde et qui sont relatives à des corps différents, l'extrapolation donne pour le produit nK relatif à l'eau des nombres différents : c'est ainsi par exemple que pour la longueur d'onde 2300, la valeur limite du produit nK est voisine de 16 pour ClNa, de 10 pour ClLi, de 20 pour ClK et NH_4Cl .

Ces faits et ceux que nous allons étudier ci-dessous vérifient l'hypothèse de la déformation des ions.

b. RÉFRACTION MOLÉCULAIRE DES SELS. — Nous définissons la réfraction spécifique d'un corps d'indice de réfraction n , de masse spécifique d par la formule

$$R = \frac{n^2 - 1}{n^2 + 2} \frac{1}{d}.$$

Si dans un mélange homogène les molécules ou les ions en présence ne se déformaient pas, on admet généralement que la réfraction spécifique serait une grandeur qui se calculerait d'après des règles d'additivité linéaires.

La réfraction spécifique R d'une solution aqueuse s'obtiendrait au moyen de la réfraction spécifique R_0 de l'eau, de la réfraction spécifique R_1 du sel et de la concentration S de la solution (S étant la quantité de sel dans 1 g de solution, c'est-à-dire $\frac{S}{1000}$), par la formule

$$R_1 = RS + (1 - S)R_0,$$

d'où

$$R = \frac{R_1 - R_0}{S} + R_0. \quad (1)$$

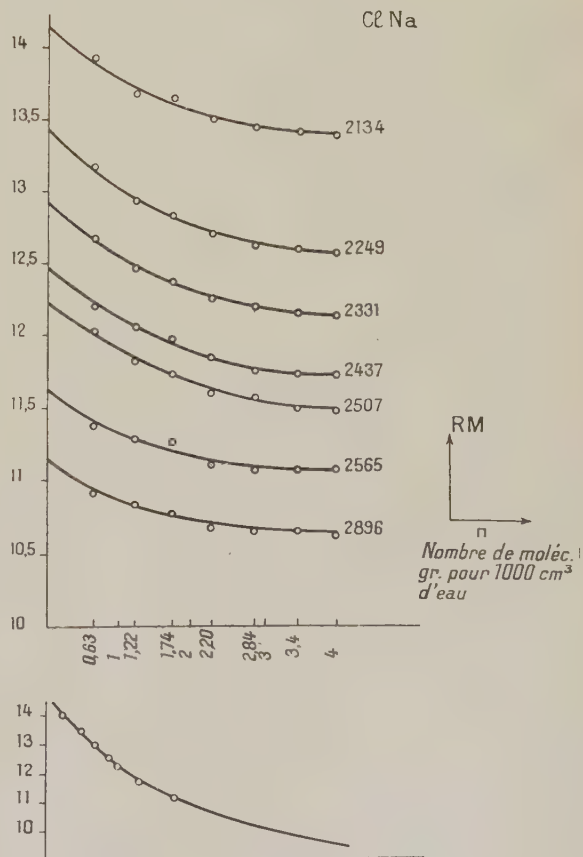


Fig. 6.

La quantité R n'est pas en général susceptible d'une mesure directe précise. Au contraire, R_0 et R_1 le sont. On calcule donc R au moyen de l'équa-

tion (1), mais le calcul ne permet pas de déterminer R avec plus de trois chiffres significatifs.

Le tableau suivant indique les résultats obtenus avec les solutions de chlorure de sodium.

TABLEAU VII. — Réfraction moléculaire de ClNa .

	19,36.	16,912.	14,266.	11,789.	9,268.	6,691.	3,736.	1,797.	0.
2134	13,38	13,40	13,43	13,50	13,64	13,67	13,93		14,12
2249	12,57	12,59	12,62	12,70	12,83	12,93	13,17		13,40
2331	12,13	12,15	12,19	12,05	12,37	12,45	12,67	12,69	12,90
2437	11,71	11,72	11,75	11,83	11,97	12,04	12,20		12,46
2507	11,48	11,49	11,57	11,59	11,73	11,81	12,03		12,20
2565	11,06	11,06	11,17	11,09	11,26	11,27	11,37	11,54	12,60
2896	10,62	10,63	10,63	10,67	10,78	10,82	10,90		11,04

La figure 6 représente ces résultats. Ils dépendent de la concentration. Les graphiques permettent de trouver la valeur de R pour une concentration nulle. Nous avons indiqué cette valeur de R dans la dernière colonne. Pour la représenter, nous avons essayé une formule du type

$$R = A + \frac{B}{\lambda^2 - \lambda_0^2},$$

R étant la valeur de RM pour $C = 0$.

Nous avons trouvé que la formule

$$R = 8,75 + \frac{15,249 \cdot 10^6}{\lambda^2 - 1,710 \cdot 10^6} \quad (\lambda \text{ en angströms})$$

représente les nombres trouvés à 1 pour 100 près.

La valeur de R correspondant à la raie D serait 9,22, et pour une longueur d'onde infinie, on trouverait 8,75.

Le tableau précédent et les graphiques (fig. 6) montrent que les variations de la réfraction moléculaire en fonction de la concentration sont plus importants dans le cas de la lumière ultra-violette que dans le cas de la lumière visible.

En comparant ces travaux et ces graphiques à ceux qu'ont publiés Fajans et ses collaborateurs dans leur série de mémoires sur la déformation des ions, on voit que les variations de la $R. M.$ sont d'autant plus nettes que les longueurs d'onde sont plus courtes. Ceci n'a pas lieu de nous surprendre, car plus la longueur d'onde est courte, plus la déformation d'un ion doit avoir d'importance.

BIBLIOGRAPHIE.

- [1] MARTENS, *Ann. der Phys.*, 1901, **6**, p. 603.
- [2] SIMON, *Ann. der Phys.*, 1894, **53**, p. 542.
- [3] FLATOW, *Ann. der Phys.*, 1903, **12**, p. 85.
- [4] LUBBEN, *Ann. der Phys.*, 1914, **16**, 180.
- [5] VOELLMY, *Z. phys. Chem.*, 1927, **127**, p. 305.
- [6] GUILLERY (P), *Phys. Z.*, 1930, **31**, p. 700.
- [7] BRUHAT et GUINIER, *Soc. fr. Phys.*, 19 janvier 1934.
- [8] DUCLAUX et JEANTET, *J. Phys.*, 1924, **5**, p. 90.
- [9] LOWRY et ALLSOPP, *Proc. Roy. Soc.*, 1931, **133**, p. 26.
- [10] TILTON et TAYLOR, *Bur. Stand. J. Res.*, 1938, **20**, 419.
- [11] JASSE (M^{lle} O.), *C. R.*, 1934, **198**, 163.
- [12] LUTEN, *J. Am. Chem. Soc.*, 1933, **55**, 2061.
- [13] LEWIS, *J. Am. Chem. Soc.*, 1933, **55**, p. 1297.
- [14] TREHIN, *Ann. de Phys.*, 1936, **5**, 445.
- [15] CHENEVEAU, *Ann. Ch. et Ph.*, 1907, **12**, p. 220.
- [16] HEYDWEILER, *Ann. der Phys.*, 1909-1915.
- [17] HEYDWEILER, *Phys. Z.*, 1925, **26**, p. 526.
- [18] FAJANS, *Zeit. f. Phys.*, à partir de 1924, **23**, 1.

NOTE AU SUJET DU MÉMOIRE DE MM. J. THIBAUD ET H. LEMONDE
intitulé Courbes d'étirement de liquides : Tensiomètre enregistreur ⁽¹⁾

Par M. PIERRE LECOMTE DU NOÛY.

Ce mémoire appelle quelques observations.

Lorsqu'en mai 1919 nous décrivions dans le *J. of. General Physiology*, vol. I, p. 521, A « *new apparatus for measuring surface tension* », nous avons décidé, pour éviter l'emploi d'un amortisseur à l'huile et pour avoir un instrument mobile et robuste, d'employer un fil de torsion. La seule différence que nous voyons entre notre instrument, que nous avons ensuite baptisé *Tensiomètre*, et celui de M. Lemonde, consiste, autant que nous pouvons en juger, dans l'absence de cadran à vernier et dans la présence d'un amortisseur rendu nécessaire par les vibrations de la lame. On ne peut donc effectuer de lectures directes. Nous avons pensé que l'existence de ce cadran constituait un perfectionnement.

Les auteurs signalent que leur instrument peut utiliser différents dispositifs d'étirement : fil horizontal, anneau, disque, etc. Nous avons, en 1919, utilisé ces différentes méthodes et particulièrement celle du fil horizontal (étrier à 3 branches), ainsi qu'en fait foi la photographie de notre premier appareil, page 523 du Mémoire précité. Nous avons pu juger des qualités de cette méthode qui présentait pour nous un seul inconvénient, à savoir qu'elle exigeait des quantités assez importantes de liquide, en raison des branches plongeantes de l'étrier. Ayant obtenu des mesures identiques au moyen de l'anneau, qui ne réclamait que 2 cm³ de liquide, nous adoptâmes l'anneau. Mais les étriers continuèrent d'être fabriqués et vendus par la Central Scientific Co pendant plusieurs années.

La dernière originalité de l'appareil Lemonde et Thibaud consisterait donc dans l'enregistrement photographique de l'étirement. Or, M. J. J. Trillat, a, le premier, fait construire et a utilisé un dispositif en tous points semblable, pour la mesure des tensions interfaciales et l'étude de ses variations en fonction du temps, en 1936 si je ne me trompe. Cet appareil est décrit dans les Comptes rendus du Congrès International de Chimie à Rome, en 1938 (Vol. II, p. 553). Il a donné, entre les mains de son auteur, les résultats les plus intéressants. Nous avons vainement cherché une référence à cette priorité dans le mémoire de M. Thibaud. L'amplification des mouvements du spot dans l'appareil original de M. Trillat était de l'ordre de 100 à 150 fois. Dans

celui de MM. Thibaud et Lemonde, de 20 fois seulement. Le perfectionnement n'est pas apparent.

Nous avons d'ailleurs fait construire en 1939 et décrit (*Chimie et Industrie*, 5 février 1940) un *tensiomètre enregistreur entièrement automatique* qui enregistre les variations de la tension pendant des heures, ou même des jours, mais basé sur un principe différent.

MM. Thibaud et Lemonde ont sans doute eu l'intention de faire ressortir les avantages de la méthode du fil droit (ou fil horizontal de traction) sur la méthode de l'anneau, que nous avons adoptée, après essais, de préférence à la première. La méthode du fil droit, nous nous en sommes convaincu en 1919, est une excellente méthode, qui a été bien étudiée par Lenard et ses collaborateurs en 1924. Mais l'exaltation de l'excellence d'une méthode n'exige pas l'écrasement d'une autre méthode. Les auteurs ont pensé qu'il était nécessaire de démontrer en même temps que la méthode de l'anneau, qui a fait ses preuves, était très mauvaise. Or, la méthode de l'anneau a été, après la construction de notre Tensiomètre, très sérieusement étudiée par Harkins et Jordan (référence p. 32 du mémoire Thibaud) et sa théorie complète a été faite par B. B. Freud et H. Z. Freud ⁽²⁾. C'est une méthode absolue. Les dimensions de l'anneau fourni avec l'appareil (périmètre 4 cm) sont telles que le facteur de correction pour l'eau, est égal à 0,990. L'erreur entre la lecture directe au cadran et la valeur absolue est donc de 1 pour 100. Les facteurs de correction sont publiés dans des tables livrées avec l'instrument pour le cas où l'on désire employer des anneaux de dimensions différentes. La valeur du rapport $\frac{R}{r}$

qui entre dans la formule de Harkins et sert d'entrée aux tables est inscrit sur les boîtes contenant les anneaux (R = diamètre moyen de l'anneau, r = diamètre du fil constituant l'anneau).

Il est à remarquer que, au surplus, dans les travaux sur la tension superficielle, la valeur absolue est beaucoup moins intéressante que les variations de tension. La mesure des tensions absolues n'est guère plus employée dans les laboratoires scientifiques et industriels que les étalons absolus de n'importe quelle autre grandeur.

L'erreur « possible » de 30 pour 100 que MM. Thi-

⁽¹⁾ *Journal de Physique*, série VIII, 1941, t. 2, p. 26.

⁽²⁾ *Journ. Am. Chem. Soc.*, 1930, t. 52, p. 1772.

baud et Lemonde n'ont garde d'oublier, correspond à des dimensions d'anneau et de fil qui ne sont *jamais* employées et n'ont *jamais* été mises en vente. Il faudrait les faire construire spécialement dans le but d'obtenir de mauvaises mesures. D'ailleurs, en choisissant du gros fil et une petite longueur pour la méthode du barreau, on obtiendrait également des erreurs importantes. Mais dans les deux cas, il faudrait le faire exprès. Ajoutons que la correction pour les brins verticaux de cette dernière méthode atteint *normalement* 1 pour 100 (même grandeur que pour la correction de l'anneau) de l'avis même de M. Thibaud. Nous ne voyons donc pas de supériorité bien marquée.

Enfin les figures 9 et 12 correspondent à un cas très particulier, celui de liquides extrêmement visqueux. Jamais il ne se produit avec les liquides ordinaires ni les solutions. Nous conseillons alors tout simplement d'employer un anneau légèrement plus grand (circonférence 6 cm) et rien de semblable ne se passe. Le facteur de correction devient alors 0,940.

Ajoutons que, contrairement à ce que pensent MM. Thibaud et Lemonde (p. 32), la méthode de l'anneau (absolue) ne peut en aucun cas être considérée comme intermédiaire entre la méthode du disque (très mauvaise et non absolue) qui fait intervenir l'angle de raccordement, alors que les deux autres en sont indépendantes, à condition naturellement d'employer un fil de platine qui ne soit pas trop épais (diamètre inférieur ou égal à 0,5 mm).

Il y aurait encore beaucoup à dire sur la forme des courbes enregistrées publiées par les auteurs qui assurément nous en donneront un jour une interprétation correcte, car il s'agit, pour un expérimentateur, de savoir quel point de la courbe correspond à la valeur exacte de la Tension. Et il nous semble que l'épaisseur seule de certains enregistrements par rapport à leur amplitude doit rendre la mesure, sur du papier quadrillé, assez difficile à 1 pour 100 près. Le cadran à vernier présente, à ce point de vue, certains avantages, sans parler de la vitesse et de la facilité des mesures.

La méthode de l'anneau a permis de nombreuses découvertes importantes, et la mise au point de techniques industrielles (chute lente de tension des colloïdes en fonction du temps et du rapport surface-volume du liquide; minima de tension; phénomène antagoniste dû à l'adsorption d'un colloïde par un autre; mesure des surfaces d'adsorption de différents adsorbants (Boutaric); modifications du pouvoir lubrifiant des huiles par adsorption des molécules polaires par la chaleur ou la filtration (Trillat); méthode pour étudier les qualités et le vieillissement des huiles de transformateurs (de la Gorce), etc.

Elle est adoptée dans tous les pays du monde par des expérimentateurs difficiles à satisfaire; elle est décrite dans presque tous les ouvrages classiques traitant de la Tension superficielle. Le Tensiomètre est construit en France — et c'est de beaucoup le modèle le meilleur et le plus perfectionné, — en Amérique, en Angleterre, en Allemagne et au Japon. Nous restons d'avis, avec Millikan, Langmuir, Harkins, Léon Brillouin, Hercik, Bakker, Eucken, Boutaric, Strohl, Trillat, Leprince-Ringuet, Freud et Freud, Seelich, Per Eckwall, Mahajan, Vallée, Herquet, Holmes, Reilly et bien d'autres, que c'est une bonne méthode au point de vue théorique et probablement la plus rapide et la plus simple au point de vue pratique. La précision du Tensiomètre classique, tel qu'on le vend, ne nous semble pas, jusqu'à plus ample informé, inférieure à celle atteinte, par d'autres dispositifs. Rien n'est plus simple, d'ailleurs, que de remplacer l'anneau par un cadre à trois côtés si on le désire. Si le côté horizontal du cadre mesure exactement 4 cm les graduations du cadran correspondent, comme pour l'anneau standard, aux valeurs en dynes/centimètre qu'on lit directement.

Quant à la différence entre la valeur lue après l'arrachement de l'anneau et juste avant l'arrachement, elle est de l'ordre de 0,05 dyne/cm et par conséquent négligeable.

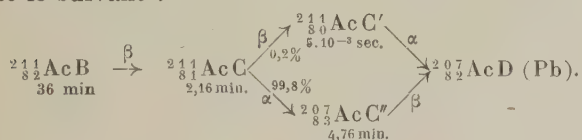
Pour terminer, MM. Thibaud et Lemonde signalent (p. 34) qu'ils ont pu « choisir parmi des corps tensio-actifs, certains produits abaissant la tension superficielle de l'eau à la moitié de sa valeur ». En 1926 (édition Américaine) et en 1929 (édition française de mon livre : *Équilibres superficiels des solutions colloïdales*, j'ai publié (p. 40, éd. franç.) des courbes où ce phénomène est suivi pas à pas en fonction du temps et où l'on voit que l'oléate de soude, à la concentration de 1/100 000, abaisse la tension superficielle statique de l'eau à 32,1 dynes, soit sensiblement moins que la moitié de la tension de l'eau pure, ou de la solution agitée. On y voit aussi que des solutions plus concentrées, dans les mêmes conditions, ne permettent pas d'atteindre un chiffre aussi bas. Nous avons montré également (ouvrage précité et *Phil. Mag.*, **48**, 664, 1924, et *J. de Phys. et le Radium*, **6**, série 6, 145, 1925) que, dans certaines conditions bien définies, l'oléate de soude pur, dilué au 1/750 000, occasionnait une chute qui pouvait atteindre 20 dynes (voir aussi Herquet, *C. R. Acad. sc.*, **213**, 302, 1941). La tension superficielle d'une solution diluée d'oléate de soude et d'autres substances hautement tensio-actifs dépend non seulement de la concentration, mais du rapport surface/volume du vase où l'on effectue la mesure.

LES RAYONNEMENTS γ ET LES NIVEAUX D'EXCITATION NUCLÉAIRES DU DÉPÔT ACTIF DE L'ACTINON

Par J. SURUGUE.
Institut du Radium.

Sommaire. — Dans cet article sont rassemblées les informations connues sur les rayonnements des corps descendant de l'actinon. Les rayonnements γ émis au cours des désintégrations successives ont été analysés et l'on a examiné les conclusions qu'on en pouvait tirer sur les états d'excitation des noyaux formés et sur la nature des rayonnements produits par leur retour à l'état fondamental.

1. Introduction. — Les corps du dépôt actif de l'actinon comprennent AcB et ses descendants, l'élément provenant directement de la désintégration de l'actinon, AcA, ayant une période trop courte ($2,10^{-3}$ sec) pour subsister dans les préparations. Le schéma des désintégrations successives est le suivant :



Les rayons γ accompagnant ces diverses transformations sont presque seulement accessibles par la méthode d'absorption et par l'étude des électrons de conversion interne. La structure fine des rayons α a uniquement montré pour AcC l'existence de deux groupes de rayons α , d'énergie différant de 350 ekV, n'indiquant ainsi que la possibilité d'un seul rayonnement γ , ayant cette énergie. L'examen des spectres continus de rayons β nucléaires a également fourni quelques indications, ainsi que nous le verrons plus loin. Par diffraction cristalline, les difficultés expérimentales résident essentiellement dans la faible intensité des sources que l'on peut obtenir. Celles-ci décroissent de plus avec une période courte, 36 min. dans le cas de la plus longue, de sorte que les mesures sont toujours assez peu commodes et que la séparation des différents éléments du dépôt actif est presque impossible à effectuer. Une autre difficulté importante résulte de la faible énergie moyenne des rayonnements γ émis dans cette famille radioactive. La majeure partie de ceux-ci sont très absorbables, et les fractions dures sont peu intenses et par suite assez difficiles à mesurer.

Tout cela explique le petit nombre d'informations dont nous disposons pour ces transformations, et aussi parfois leur incertitude.

Dans les chapitres suivants sont groupés les résultats obtenus par différentes méthodes, et leur examen est suivi d'une discussion des conséquences que l'on peut en tirer.

2. Méthode d'absorption. — Cette méthode consiste à mesurer l'intensité du rayonnement qui a traversé des épaisseurs croissantes d'un absorbant déterminé. Si le rayonnement étudié est homogène, l'absorption est exponentielle et la pente de la courbe semi-logarithmique de l'intensité en fonction de l'épaisseur donne immédiatement le coefficient d'absorption global. Si le rayonnement est hétérogène, il faut décomposer la courbe en plusieurs autres et les résultats sont très incertains, sauf pour le rayonnement le plus pénétrant.

Utilisant l'aluminium comme absorbant, Rutherford et Richardson [1] trouvèrent un rayonnement très hétérogène, pour lequel la composante la plus dure a un coefficient d'absorption massique $\frac{\mu}{\rho} = 0,073$.

La même méthode fut ensuite reprise par M. Curie et P. Savel [2], utilisant une préparation plus intense et un appareil de mesure plus sensible (électromètre Hoffmann relié à une chambre d'ionisation à argon sous haute pression) afin de réaliser une absorption plus importante. Le rayonnement γ le plus dur a été trouvé posséder un coefficient d'absorption $\frac{\mu}{\rho} = 0,076$ pour des épaisseurs de plomb comprises entre 46 et 106 mm. Ces deux valeurs sont en très bon accord et correspondent à un rayonnement γ d'environ 14 U.X., soit une énergie d'environ 860 ekV, d'après les valeurs théoriques des coefficients d'absorption [3]. Les résultats obtenus par ces auteurs dans la comparaison de ce rayonnement avec celui de Ra (B + C) ont été mis à profit par Kara-Michailova [4] pour calculer le nombre de quanta de cette énergie émis par désintégration, qui a été évalué à 0,079. Signalons d'ailleurs que, mesurant l'ionisation produite dans une chambre à pression après absorption des rayons γ dans des écrans de plomb jusqu'à 20 mm d'épaisseur, ce dernier auteur a trouvé un coefficient d'absorption massique $\frac{\mu}{\rho} = 0,114$.

Il est possible que ce gros écart avec les mesures précédentes soit en rapport avec le manque de précision dans les mesures, dû à la trop petite inten-

sité des sources utilisées, donnant sans écran de plomb une ionisation seulement six fois plus forte que l'ionisation propre de l'appareillage.

L'origine de ce rayonnement γ de grande énergie est difficile à déterminer par la seule méthode d'absorption, le dépôt actif de l'actinon étant formé de corps à vie très courte, difficiles à séparer. Un travail de Benedetti [5] donne pourtant une indication à ce sujet. L'appareil de mesure était un compteur à fil Geiger-Müller et l'absorbant du plomb. Après 5 mm, il trouve un coefficient d'absorption massique $\frac{\mu}{\rho} = 0,076$. Avec une préparation de AcC''

seule obtenue par recul, le rayonnement le plus dur a sensiblement le même coefficient d'absorption et l'on vérifiait que ce rayonnement décroissait avec la période de AcC'' pour s'assurer qu'il n'était pas dû à des projections de AcB ayant suivi les atomes de recul. Les conclusions de cet auteur étaient que les deux transformations $\text{AcB} \xrightarrow{\beta} \text{AcC}$ et $\text{AcC}'' \xrightarrow{\beta} \text{Pb}$ donnent naissance à deux rayonnements γ d'énergie voisine, mais environ 10 fois plus intense dans la première que dans la seconde.

3. Généralités sur le phénomène de conversion interne. — Lorsqu'un noyau atomique est produit dans un état excité, à la suite d'un mécanisme quelconque, il peut passer à l'état fondamental ou à un état d'excitation intermédiaire en émettant un ou plusieurs photons suivant le cas, l'énergie ainsi libérée, en une ou plusieurs fois, étant égale à l'énergie d'excitation. C'est en radioactivité naturelle le processus normal d'émission d'un rayonnement γ .

Cette énergie disponible peut aussi ne pas sortir de l'atome sous forme de rayonnement électromagnétique, mais être transmise directement à un électron extra-nucléaire, donnant ainsi naissance à un rayon β d'énergie déterminée, égale à l'énergie du photon correspondant diminuée de l'énergie de liaison de l'électron. La probabilité de ce processus dépend de la fréquence du rayonnement et de sa symétrie (coefficient de conversion interne).

La spectrographie de ces rayons β secondaires, effectuée au moyen d'un champ magnétique uniforme par la méthode de focalisation, offre une précision très satisfaisante en ce qui concerne l'énergie des raies, et si leur attribution à un rayonnement γ peut se faire sans trop d'incertitude, l'énergie de ce dernier est connue avec une précision à peu près égale (de l'ordre de 1 à 2/1000^e). En ce qui concerne l'intensité des rayons γ , la question est beaucoup plus complexe. L'intensité des raies β est assez mal connue lorsqu'on se sert d'une plaque photographique pour les recevoir, ce qui présente par ailleurs d'incontestables avantages. D'autre part, on passe de l'intensité des raies β à celle des rayonnements γ par l'intermédiaire du coefficient de conversion interne; celui-ci dépend beaucoup de la symétrie

du rayonnement émis, et il n'est pas toujours aisé d'arrêter un choix parmi les diverses possibilités qui se présentent.

Cette question ayant fait l'objet de nombreuses discussions, nous allons brièvement rappeler quelques résultats importants concernant le coefficient de conversion interne. Celui-ci a longtemps été défini par le rapport de la probabilité d'émission d'un électron secondaire à celle de la probabilité d'excitation du noyau [6], c'est-à-dire, si b est la probabilité d'émission d'un électron et g celle d'un photon,

on a $\alpha = \frac{b}{b+g}$ avec $\alpha = \alpha_K + \alpha_L + \dots, \alpha_K, \alpha_L \dots$,

se rapportant aux différentes couches électroniques, chacun d'eux étant défini de la même façon. Les conceptions actuelles font considérer l'émission du photon et celle de l'électron comme deux phénomènes distincts permettant l'un et l'autre la perte d'énergie d'excitation du noyau. La probabilité de disparition de l'état d'excitation est égale à la somme des probabilités de chacun de ces deux processus, et le terme de conversion interne apparaît ainsi comme tout à fait impropre, puisqu'il fait penser à un phénomène analogue à l'effet photoélectrique, qui se produirait sur les électrons entourant le noyau même qui subit une transition. Il est préférable de parler du rapport des électrons aux photons émis,

soit $\frac{N_e}{N_\gamma} = \frac{b}{g}$. Il est clair, d'une part, que si α est

nécessairement inférieur à 1, ce dernier rapport peut prendre toutes les valeurs possibles et que, d'autre part, ces deux nombres sont peu différents lorsqu'ils sont petits devant 1. C'est le cas général en radioactivité naturelle où l'on ne connaît que le rayonnement de 1415 ekV de RaC qui paraît entièrement converti, et peut-être aussi ceux de 116 ekV de AcX , 149 ekV, 60,6 ekV et 53 ekV de RdAc [7]. Par contre, en radioactivité artificielle,

on se trouve en présence de rapports $\frac{N_e}{N_\gamma}$ beaucoup

plus grands, tenant en particulier à la valeur bien plus petite du numéro atomique des noyaux en jeu.

Les calculs théoriques ont tout d'abord été faits pour les noyaux lourds possédant des énergies d'excitation assez grandes et dans l'hypothèse que les rayonnements émis ont une symétrie d'ordre peu élevé (dipôles et quadripôles). Des calculs plus récents ont été conduits en se plaçant dans des cas un peu différents, soit pour des noyaux plus légers, soit pour des énergies faibles : Hebb et Uhlenbeck [8] pour des noyaux légers et des énergies faibles, Dancoff et Morrison [9] pour les noyaux de numéro atomique inférieur à 50. Hebb et Nelson [10] ont étendu les calculs précédents aux électrons issus de la couche L, et leurs résultats ont été développés au point de vue numérique par Flüge [11]. Tous ces calculs ne sont applicables que pour des noyaux relativement légers, et nous avons vérifié que l'application de ces formules aux noyaux très lourds

($Z = 84$ par exemple) donne des résultats très erronés.

Nous donnons dans la figure 1 les courbes de variation du coefficient de conversion interne pour le noyau $Z = 81$, déduites de celles publiées par Hulme, Mott, Oppenheimer et Taylor [6]. Les courbes relatives aux rayonnements dipolaires sont les courbes théoriques, celles qui sont tracées en trait plein pour les rayonnements quadripolaires sont des courbes empiriques, déduites des mesures expérimentales et tenant compte du fait que la courbe réelle doit se rapprocher de celle d'un dipôle magnétique aux faibles énergies et de celle d'un quadripôle électrique aux énergies élevées, le rapport des deux variant comme λ^2 , carré de la longueur d'onde du rayonnement γ .

Si l'on considère les variations de moment angulaire, on peut tout d'abord faire un rapprochement avec ce que l'on trouve dans les rayonnements atomiques, provenant des couches électroniques extranucléaires. On sait que les rayonnements les plus fréquents sont dipolaires, correspondant à une variation du moment angulaire égal à 1 unité, et qu'à côté de ceux-ci peuvent également s'observer des rayonnements quadripolaires, beaucoup plus rares, entre des états de moment angulaire différant de 2 unités ou encore égaux, le rapport des probabilités des deux rayonnements étant $\left(\frac{R}{\Lambda}\right)^2$, où R est le rayon du système radiant et Λ la longueur d'onde. Si ce rapport est très petit pour l'atome et la lumière visible ($\sim 10^{-6}$), il est beaucoup plus grand pour le noyau et le rayonnement γ ($\sim 10^{-3}$ pour 1 MeV). Si l'on considère de même une différence de moment angulaire de l unités, donnant lieu à un rayonnement multipôle d'ordre $2l$, la probabilité est proportionnelle à $\left(\frac{2\pi R}{\Lambda}\right)^{2l}$.

Si donc une transition peut se produire entre deux états de moment angulaire différant de L , on aura un rayonnement dont l'ordre de multiplicité est $2L$, mais on pourra aussi en avoir d'autres d'ordre de multiplicité $2l$ plus élevé, leur intensité décroissant en progression géométrique quand $2l$ croît en progression arithmétique. Les rayonnements d'ordre $2l$ élevé ne sont donc accessibles à l'expérience que si ceux qui ont un ordre plus petit sont interdits. C'est ce qu'indiquent Dancoff et Morrison en précisant que si les deux états extrêmes sont caractérisés par J et J' , les valeurs possibles de l sont comprises entre $J - J'$ et $J + J'$, et les valeurs minima sont $L + 1$ pour le rayonnement électrique et L pour le rayonnement magnétique, quand $L = J - J'$ et le changement de parité sont de parités contraires; L pour le rayonnement électrique et $L + 1$ pour le rayonnement magnétique, quand L et le changement de parité sont de même parité.

Le coefficient de conversion interne augmentant beaucoup avec l , la comparaison de l'intensité du

rayonnement γ et de celle des électrons secondaires permet donc de fixer le degré de multiplicité du rayonnement.

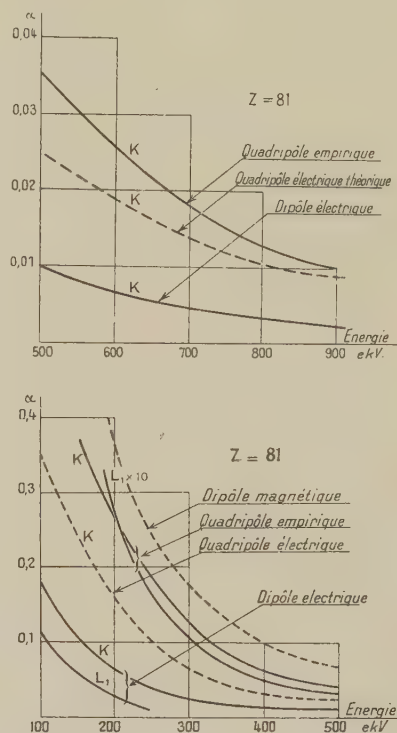


Fig. 1.

D'autre part, si l'on considère les intensités des raies de conversion dans les différentes couches électroniques, pour une même énergie on trouve que les électrons plus éloignés du noyau sont arrachés d'autant plus facilement que l est plus grand, c'est-à-dire que les rapports $\frac{\alpha_L}{\alpha_K}$ croissent avec l . On a donc là un moyen très simple de déterminer la valeur la plus convenable de l .

Nous reviendrons sur cette question du choix de la nature du rayonnement à propos des rayonnements de AcC.

4. Résultats expérimentaux donnés par la conversion interne. — Les premières mesures faites par cette méthode dans la famille de l'actinium sont dues à O. Hahn et L. Meitner [12]. D'autres auteurs ont publié ensuite des résultats très concordants pour les corps du dépôt actif de l'actinon [13]. Le spectre de raies β comprend un assez petit nombre de raies d'intensité notable qui indiquent les rayonnements γ donnant une conversion interne importante : pour la transformation $\text{AcB} \rightarrow \text{AcC}$, quatre rayonnements d'énergie 65 ekV, 404 ekV, 426 ekV, 829 ekV; pour la transformation $\text{AcC} \rightarrow \text{AcC}'$, le

rayonnement intense de 350 ekV déjà trouvé par la structure fine des rayons α .

D'autres raies plus faibles peuvent être attribuées à des rayonnements γ de moindre intensité. C'est le cas, par exemple, du rayonnement γ de 870 ekV, de $\text{AcC}'' \rightarrow \text{AcD}$, dont l'énergie approximative a été donnée par la méthode d'absorption et qu'on peut retrouver par une seule raie de conversion. C'est aussi le cas des rayonnements de 83 ekV, 487 ekV et 764 ekV de $\text{AcB} \rightarrow \text{AcC}$.

L'intensité des raies β a été déterminée en valeur absolue par comparaison avec la raie intense de ThB , les intensités des sources étant comparées par l'intermédiaire du rayonnement α [14]. On peut en déduire les nombres du Tableau I, où sont calculées à partir

de ces valeurs celles des probabilités d'excitation nucléaire et d'émission des rayonnements γ , dans les deux hypothèses de rayonnements quadripolaires et de rayonnements dipolaires, pour la transformation $\text{AcB} \rightarrow \text{AcC}$. Dans ce tableau, on a calculé à partir du nombre d'électrons par désintégration (3^e colonne) la probabilité d'excitation du noyau et la probabilité d'émission de photons (supposés quadripolaires) au moyen des courbes tracées en trait continu sur la figure 1. Pour la plupart des rayonnements, il s'agit d'électrons extraits de la couche K et pour les deux moins énergiques, d'électrons de la couche L_1 . Rappelons en passant que la précision sur la mesure des intensités n'est pas très bonne et qu'on peut l'estimer de l'ordre de 10 pour 100.

TABLEAU I.

Rayonnement γ .	Énergie en ekV.	Électrons émis de la 1 ^{re} couche (K ou L_1).	Probabilité d'excitation nucléaire.		Probabilité d'émission de photon quadripôle.	Énergie émise par rayonnement γ en ekV.
			Quadripôle.	Dipôle.		
A	65,2	0,0032	0,0067	0,008	0,00322	0,21
Ac_1	83	0,00005	0,00017	0,00019	0,00012	0,01
C	404	0,004	0,065	0,236	0,0604	24,4
D_2	425	0,003	0,062	0,202	0,0582	24,8
Dc_1	487	0,0001	0,0026	0,010	0,0025	1,22
Dg	764	0,00016	0,013	0,067	0,0126	9,6
E	829	0,0016	0,135	0,400	0,133	110
Total					0,27	170,2

5. Les états d'excitation de $^{211}_{81}\text{AcC}$. — A la suite de la transformation $\text{AcB} \rightarrow \text{AcC}$, le noyau formé émet sept rayonnements γ , permettant de construire le schéma de niveaux d'excitation du Tableau II. Il y aurait naturellement d'autres combinaisons possibles, mais c'est celle-là qui groupe le mieux les énergies et les intensités des divers rayonnements.

Le noyau $^{211}_{81}\text{AcC}$ possède un nombre de charge et un nombre de masse impairs; le moment angulaire de l'état fondamental est certainement différent de zéro, et multiple impair de $1/2$. Nous savons par l'étude des rayons β nucléaires de AcB que la transformation $\text{AcB} \xrightarrow{\beta} \text{AcC}$ peut aboutir au niveau fondamental ou au niveau de 829 ekV, ces deux transitions se faisant avec des probabilités qui ne sont pas extrêmement différentes puisque les mesures sur l'intensité des deux groupes donnent un rapport de l'ordre de 10 au maximum [15]. Cela donne à penser que les deux transitions se font avec le même changement de moment angulaire, car sinon les probabilités des deux émissions β seraient au moins dans le rapport $\left(\frac{R}{\lambda}\right)^2$, R étant le rayon du noyau et λ la longueur d'onde

associée à l'électron émis, soit, avec les énergies qui nous intéressent, au moins $1/100^e$. Le niveau fondamental et le niveau de 829 ekV ont donc même moment angulaire et le rayonnement de 829 ekV est certainement quadripolaire, ce qui est d'ailleurs confirmé par les considérations d'intensité.

Pour les autres rayonnements, en particulier ceux de 404 et 425 ekV, nous sommes également conduits à les considérer comme quadripolaires, car autrement leur intensité serait beaucoup trop grande. Le Tableau I montre, en effet, que l'on aurait dans ce cas pour l'ensemble de ces deux radiations 0,44 photon par désintégration, soit plus de trois fois plus que pour le rayonnement pénétrant, ce qui est en contradiction avec les expériences d'absorption.

Il n'y a pas pour les autres rayonnements de raison aussi immédiate de s'arrêter à un type de radiation, à cela près qu'il y a lieu de penser que celui de 65 ekV peut être quadripolaire à cause de son énergie faible. On considère alors l'émission des rayons β nucléaires de la transformation $\text{AcB} \xrightarrow{\beta} \text{AcC}$. Elle peut se faire en aboutissant à l'un quelconque des niveaux d'excitation trouvés pour AcC . Pour un de ceux-ci, de probabilité λ , si π est la constante

de désintégration globale de AcB, la probabilité pour que la transformation γ aboutisse est $\lambda\omega$. Si E est son énergie, les rayons β correspondants auront une énergie maximum $E_0 - E$ (E_0 = énergie maximum du spectre, aboutissant au niveau fondamental) et l'on peut voir si ces deux coordonnées tombent sur les diagrammes de Sargent. On trouve ainsi que pour tous les niveaux les points figuratifs se rassemblent assez bien sur la première courbe, relative à un changement de moment angulaire nul, et il n'y a que le niveau 487 ekV qui donne un point

qu'on peut aussi bien relier à la deuxième courbe qu'à la première, pouvant donc correspondre à un changement de moment angulaire de 2 ou de 0. Il n'y a probablement pas à attribuer une trop grande rigueur à ce genre de raisonnement, puisque les règles de sélection ne peuvent être aussi strictes et laissent la possibilité de figurer des transitions correspondant à une variation de moment angulaire de 1 unité sur les deux courbes, mais il était intéressant de remarquer dans ce cas la bonne concordance avec les autres considérations.

TABLEAU II.

Énergie ekV.	Probabilités d'excitation des niveaux.	Constantes partielles de désintégration de AcB
829	0,204	0,65 (10^{-4} sec $^{-1}$).
764	0,006	0,019 »
487	0,0032	0,0103 »
404	0,0028	0,009 »
0	0,784	2,52 »
Total..	1	3,208 »

Si nous considérons enfin le rapport des intensités des raies de conversion K et L_1 (les raies L_2 et L_3 étant très faibles), connu seulement pour les rayonnements de 404 ekV, 425 ekV, 487 ekV et 829 ekV, nous trouvons $\frac{N_K}{N_{L_1}} = 8; 4; 4; 5$ respectivement. Hebb et Nelson [10] donnent une relation entre ce rapport et la quantité $\frac{Z^2}{E}$, quotient du carré du nombre de charge par l'énergie du quantum, pour des noyaux assez légers ($Z < 50$). En extrapolant jusqu'à $Z = 81$, on ne peut espérer tout au plus qu'un ordre de grandeur, mais les valeurs ainsi trouvées semblent en faveur de l'hypothèse que tous les rayonnements sont quadripolaires. On trouve en effet 6; 6,1; 6,6; 8 pour des rayonnements quadripolaires et 10; 10; 10; 10,4 pour des rayonnements dipolaires.

Remarquons d'ailleurs que l'importance qui s'attache à la nature de ces rayonnements est surtout grande pour les plus intenses, pour lesquels les conditions d'intensité sont suffisantes. Il est néanmoins utile de se rendre compte si les autres

doivent être ou non considérés comme présentant la même symétrie.

En s'arrêtant à l'hypothèse que tous les rayonnements sont quadripolaires, les intensités des photons sont données par la sixième colonne du Tableau I.

Les probabilités d'émission de photons donnent un total de 0,27 photon par désintégration et une énergie totale émise sous forme de rayonnement γ égale à 170,2 ekV, nombre en très bon accord avec l'ordre de grandeur de 166 ekV environ indiqué par M. Curie [16]; l'énergie moyenne des photons émis est alors : $\frac{170,2}{0,27} = 630$ ekV.

Ces nombres permettent de calculer les probabilités d'excitation des différents niveaux, qui sont groupés dans le Tableau II.

La dernière colonne donne les constantes partielles de désintégration, pour les transitions aboutissant à chacun des niveaux d'excitation indiqués, au cours de la transformation AcB \rightarrow AcC.

On voit que le rapport des probabilités des deux états extrêmes, niveau fondamental et niveau

de 829 ekV, est de 3,8, c'est-à-dire que les deux groupes principaux de rayons β nucléaires émis par AcB ont des énergies maxima différentes de 829 ekV et sont dans le rapport de 1 pour les moins énergiques à 3,8 pour les plus énergiques. Ce nombre est supérieur à celui donné par Sargent [15], mais en bon accord avec les courbes publiées par Lecoin [17] et aussi avec l'intensité du fond continu de nos propres clichés dans cette région du spectre. Les autres niveaux n'interviennent pratiquement pas pour perturber le fond continu puisque leur probabilité est au plus de 0,01 [1].

Le noyau AcC se désintègre en donnant un embranchement : 99,8 pour 100 se transformant en AcC'' par émission de rayons α et 0,2 pour 100 en AcC' par émission de rayons β . La période de AcC est de 136 sec, et la vie moyenne de l'état excité est fournie par la formule : $\tau = 5 \cdot 10^{-2} l^2 \left(\frac{20}{h\nu} \right)^{2l+1}$ [19]

donnant pour le niveau 829 ekV, avec $l = 2$ puisque le rayonnement est celui d'un quadripôle $l = 2 \cdot 10^{-13}$ sec., valeur encore trop grande puisqu'elle ne tient pas compte des autres rayonnements issus de ce niveau. Cette durée est beaucoup trop courte pour qu'une désintégration puisse se faire à partir du niveau excité, de sorte que l'on ne peut pas trouver trace de cette énergie de 829 ekV dans les rayonnements α et β de AcC et que ces deux émissions se produisent à partir du niveau fondamental de AcC.

On peut d'ailleurs remarquer qu'un rayon α émis par le noyau dans l'état excité aurait presque la même énergie que les rayons α de AcC', soit $6621 + 829 - 15 = 7435$ ekV pour les premiers et 7445 ekV pour les seconds, compte tenu de la correction de recul du noyau formé. Si donc, bien que ce soit extrêmement improbable, ils'en produisait, on ne pourrait les reconnaître qu'avec beaucoup de difficultés.

6. Les états d'excitation des autres éléments.

— Les rayons α émis au cours de la transformation $\text{AcC} \rightarrow \text{AcC}''$ présentent une structure fine et la différence d'énergie correspondante fournit un rayonnement γ de 350 ekV, retrouvé par ses raies de conversion interne. Les intensités des deux groupes de rayons α sont dans le rapport de 0,17 [20] à 0,25 [21] suivant les auteurs. Cela exige que le rayonnement γ soit encore quadripolaire. L'intensité de la raie de conversion est de 0,016 électron par désintégration, ce qui donne comme intensité du photon (supposé quadripolaire) 0,122, soit une énergie totale émise sous forme de rayonnement γ égale à $350 \times 0,122 = 42,8$ ekV, et comme probabilité d'excitation la valeur 0,14. Cette valeur est en assez bon accord avec les mesures relatives aux rayons α , chacune des méthodes présentant dans la mesure des intensités une précision assez médiocre. Si l'on supposait le rayonnement dipolaire, cela

conduirait à une intensité de 0,7 photon par désintégration et à un rapport de 2,3 pour les deux composantes de structure fine des rayons α , nombre beaucoup trop grand.

Ici encore, la vie moyenne de l'état excité du noyau AcC'' est très petite devant sa période de désintégration, ce qui fait que les rayons β émis au cours de la transformation $\text{AcC}'' \rightarrow \text{AcD}$ le sont par le noyau non excité. Si leur spectre est complexe, cela ne peut donc provenir que de l'existence de niveaux d'excitation pour le noyau AcD. L'étude du spectre continu de rayons β donne une limite supérieure d'énergie de l'ordre de 1500 ekV [15]. Lecoin avait donné comme possible l'existence d'un spectre complexe, avec une différence d'énergie de 350 ekV, en employant la construction de Konopinski-Uhlenbeck [17]. Cela aurait exigé l'émission d'un photon très intense, puisque la majeure partie des rayons β aurait eu une énergie maximum de 1500 ekV et un petit nombre l'énergie 1850 ekV. Or, on ne trouve nettement qu'un rayonnement γ de faible intensité émis dans cette transformation, et d'énergie très supérieure à 350 ekV.

Les expériences de Benedetti [5] indiquent en effet un rayonnement γ d'énergie voisine de celle de AcC, et qu'on peut retrouver par une raie de conversion interne [18]. Celle-ci correspond à un photon de 870 ekV, qui est vraisemblablement encore quadripolaire, d'intensité égale à environ 0,005, soit $1/25^e$ du rayonnement γ dur de AcC. Si on le supposait dipolaire, cela conduirait à une intensité environ trois fois supérieure, nettement trop grande. Les mêmes expériences indiquaient un rayonnement mou de l'ordre de 80 ekV et d'intensité très supérieure. On ne le retrouve pas dans le spectre β [22] qui donne seulement dans cette région des raies très faibles, alors qu'elles devraient être assez intenses puisque pour ces faibles énergies le coefficient de conversion interne est élevé.

Nous ne pouvons donc retenir que le rayonnement de 870 ekV, conduisant à l'existence d'un niveau d'excitation pour le noyau AcD. Cela ne doit d'ailleurs entraîner qu'une très petite perturbation dans le fond continu des rayons β de AcC'', la proportion des rayons de moindre énergie étant seulement de l'ordre de $1/200^e$ des autres, avec une énergie maximum d'environ 630 ekV.

Le second embranchement, par AcC', ne donne que des renseignements très réduits à cause de la petite proportion des noyaux qui se désintègrent suivant cette voie. Les noyaux AcC' émettent des rayons α qui présentent vraisemblablement une structure fine à cause de l'existence du niveau d'excitation précédemment indiqué pour AcD, mais on ne peut rien dire sur les intensités relatives des deux composantes.

On peut se demander s'il est possible qu'il se produise une émission de rayons α de long parcours comme c'est le cas dans les autres familles radioactives.

On a représenté (fig. 2) les désintégrations successives avec l'énergie de chacune d'elles. On voit que

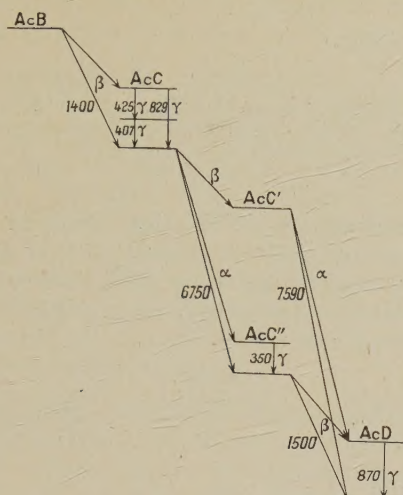


Fig. 2.

l'énergie limite du spectre β de la transformation $\text{AcC} \rightarrow \text{AcC}'$ doit être de l'ordre de 640 ekV, énergie obtenue par différence. Un noyau AcC' produit dans l'état excité ne peut donc posséder

qu'une énergie maximum inférieure à cette valeur, donc environ 600 ekV, de sorte que la plus grande énergie que pourraient avoir les rayons α de long parcours serait $7590 + 600 = 8200$ ekV, diminuée de l'énergie de recul, ce qui correspond à un parcours d'environ 7,4 cm dans l'air normal. La vie moyenne de l'état excité serait alors, en supposant le rayonnement quadripolaire, de l'ordre de $8 \cdot 10^{-13}$ sec, soit un rapport de 10^{-10} avec la période de AcC' , évaluée à $5 \cdot 10^{-3}$ sec au moyen de la loi de Geiger-Nuttall. Les rayons de long parcours seraient au maximum environ 10^4 fois moins fréquents qu'avec ThC' ou RaC' . Cela explique l'insuccès des recherches entreprises dans ce sens, qui n'ont pas pu mettre en évidence d'une façon certaine des rayons α de long parcours [23].

Ce travail est le résultat de recherches diverses dont une grande partie ont été effectuées au Laboratoire Curie, de l'Institut du Radium. Commencées par M^{me} Curie elles ont été poursuivies sous la direction bienveillante de M. A. Debierne et de M^{me} Joliot-Curie qui y ont chacun apporté conseils et encouragements.

Manuscrit reçu le 27 mars 1942.

BIBLIOGRAPHIE.

- [1] RUTHERFORD et RICHARDSON, *Phil. Mag.*, 1913, **26**, p. 937.
- [2] M. CURIE et P. SAVEL, *J. de Phys.*, 1933, **4**, p. 457.
- [3] SIZOO et COUMOU, *Physica*, 1936, **3**, p. 921. — SIZOO et WILLEMSSEN, *Physica*, 1938, **2**, p. 100.
- [4] KARA-MICHAILOVA, *Proc. Camb. Phil. Soc.*, 1938, **34**, p. 429.
- [5] S. BENEDETTI, *J. de Phys.*, 1939, **10**, p. 294.
- [6] HULME, MOTT, OPPENHEIMER et TAYLOR, *Proc. Roy. Soc.*, 1936, **155**, p. 315, et références y indiquées.
- [7] FRILLEY, *J. de Phys.*, 1940, **8**, p. 34.
- [8] HEBB et UHLENBECK, *Physica*, 1938, **5**, p. 605.
- [9] DANCOFF et MORRISON, *Phys. Rev.*, 1949, **55**, p. 122.
- [10] HEBB et NELSON, *Phys. Rev.*, 1940, **58**, p. 486.
- [11] FLUGGE, *Phys. Zeits.*, 1941, **32**, p. 221.
- [12] O. HAHN et L. MEITNER, *Zeits. für Phys.*, 1925, **34**, p. 795.
- [13] SZÉ-SHIH-YUAN, *C. R. Acad. Sc.*, 1932, **195**, p. 773. — T. GRAF, *C. R. Acad. Sc.*, 1933, **197**, p. 238. — J. SURUGUE, *J. de Phys.*, 1936, **7**, p. 337; *Ann. de Phys.*, 1937, **8**, p. 484.
- [14] K. T. LI, *Proc. Roy. Soc.*, 1937, **158**, p. 571.
- [15] SARGENT, *Phys. Rev.*, 1938, **54**, p. 232; *Canadian Journ. of Research*, 1939, **17**, p. 82.
- [16] M. CURIE, *Radioactivité*, Paris, 1935, p. 322.
- [17] M. LECOIN, *J. de Phys.*, 1938, **9**, p. 82.
- [18] J. SURUGUE, *C. R. Acad. Sc.*, 1941, **212**, p. 337.
- [19] BETHE, *Rev. of Modern Physics*, 1937, **9**, p. 226.
- [20] RUTHERFORD et WYNN-WILLIAMS, *Proc. Roy. Soc.*, 1931, **133**, p. 351.
- [21] S. ROSENBLUM, M. GUILLLOT et M. PÉREY, *C. R. Acad. Sc.*, 1936, **202**, p. 1274.
- [22] S. P. CHOONG et J. SURUGUE, *J. de Phys.*, 1938, **9**, p. 437.
- [23] RUTHERFORD, WARD et WYNN-WILLIAMS, *Proc. Roy. Soc.*, 1930, **129**, p. 211. — M. CURIE et W. LÜBB, *J. de Phys.*, 1933, **4**, p. 513.

UN NOUVEAU GÉNÉRATEUR ÉLECTROMAGNÉTIQUE DE HAUTE TENSION CONTINUE

Par M. MARCEL PAUTHENIER.

Sommaire. — Dans le domaine des hautes tensions continues inférieures à 100 kilovolts, il y a intérêt à substituer aux anciennes machines électrostatiques, de très faible débit, encombrantes et fragiles, un petit générateur plus puissant, robuste, et constitué par des pièces industrielles interchangeables.

I. Principe. — Le nouveau générateur comprend : un rupteur d'allumage d'automobile, une bobine de rupteur à primaire fortement isolé, un petit kénotron *non isolé*, un condensateur égaliseur de tension. Un petit moteur (1/50 CV) entraîne le rupteur.

Le montage est conforme au schéma ci-contre (fig. 1).

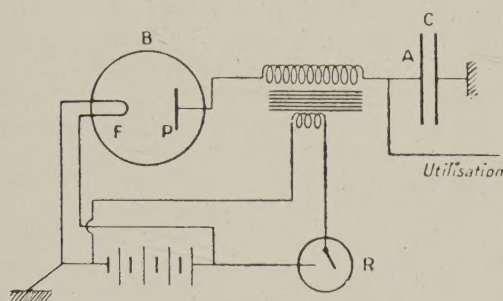


Fig. 1.

A chaque fonctionnement du rupteur, le secondaire de la bobine est, comme on sait, le siège de deux f. é. m. inverses $+e_1$ et $-e_2$ correspondant respectivement à l'établissement et à la rupture du courant primaire. On utilise la f. é. m. $-e_2$, la plus élevée en valeur absolue, pour charger l'armature isolée A du condensateur C. L'autre extrémité du secondaire est connectée à la plaque P d'un petit kénotron B dont le filament F est à la terre, et chauffé par la même batterie d'accumulateurs qui alimente le rupteur. *Ce dispositif ne nécessite donc aucun transformateur de chauffage à secondaire isolé.*

Si l'on ne demande aucun courant à l'appareil, l'armature A prend par rapport à la terre le potentiel $-e_2$, la f. é. m. $+e_1$ de sens inverse ne pouvant donner lieu à aucun courant électronique entre la plaque P et le filament F.

Les diverses pièces mentionnées ci-dessus se trouvent couramment dans le commerce. Seule la bobine du rupteur, dont le primaire a par construction un point commun avec le secondaire, exige une modification : Après avoir enlevé le boîtier métallique, on introduit fer et enroulement secondaire dans un tube de verre épais de 3 mm où l'on coule du brai, après avoir ménagé les sorties du secondaire. On bobine ensuite sur le tube de verre, entre joues de bakélite, l'enroulement primaire (environ 250 tours de fil 9/10).

II. Résultats. — Voici les résultats obtenus dans un appareil réalisé au laboratoire avec un rupteur de moteur quatre cylindres dont l'alimentation se fait normalement sous 6 V, mais peut être portée sans inconvénient à 8 V.

Tension continue primaire (en V).	Courant demandé au secondaire (en mA).	Tension continue secondaire (en kV).
6	0	25
8	0	34
6	0,6	4,4
8	1	6

Les résultats ci-dessus sont, dans de larges limites, indépendants de la vitesse de rotation, comme le montre la caractéristique ci-contre (fig. 2) relevée dans le cas de la troisième ligne du tableau.

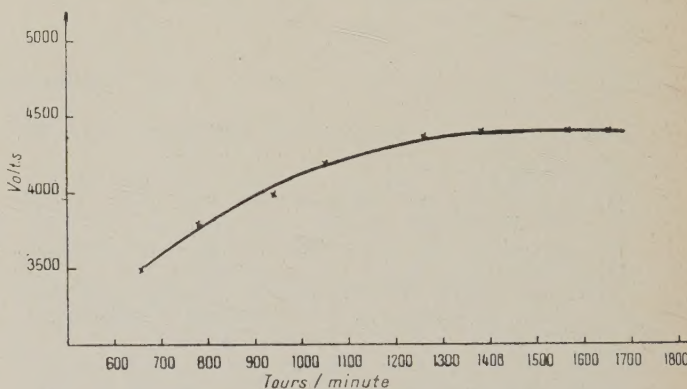


Fig. 2.

L'examen oscilloscopique, fait dans le cas de $C = \frac{1}{2} \mu F$, montre que les écarts de tension par rapport à la valeur moyenne sont, pour les pointes de très courtes durées, de 8 pour 1000, et, pour le reste de la courbe, inférieurs à 2 pour 1000.

III. Généralisation. — On peut, après modification convenable du condensateur qui absorbe l'étincelle primaire, obtenir des tensions secondaires plus élevées et des courants secondaires plus intenses.

Étant données plusieurs bobines modifiées comme nous l'avons dit, on peut en effet monter les secondaires de plusieurs bobines soit en série, soit en

parallèle, tout en continuant à n'utiliser qu'un seul kénotron. Mais dans tous les cas, il est indispensable de monter les primaires de bobines *en série*.

Bien entendu, toujours le kénotron doit être capable de supporter la tension $|e_1| + |e_2|$.

IV. Remarques de construction. — Dans la réalisation de cet appareil il ne faut jamais perdre de vue la valeur du gradient disruptif dans le diélectrique intéressé. La construction ne doit pas utiliser des fils fins, des lames, mais des tiges ou des tubes de rayon convenable, ou des électrodes de courbure appropriée.

En nous inspirant de cette remarque, nous avons réalisé un appareil pratiquement sans fuites, à propos duquel je remercie MM. Demon et Dubois de leur bonne collaboration.

V. Usages du générateur décrit ci-dessus. — Outre la possibilité évidente de remplacer avantageusement les machines électrostatiques dans les laboratoires ou amphithéâtres chauffés insuffisamment, la machine ci-dessus décrite peut rendre les plus grands services dans les recherches de physique atmosphérique, soit à bord d'un ballon ou d'un avion, soit dans un laboratoire de montagne dépourvu de haute tension continue, soit même sur le terrain. Nous en avons signalé quelques applications dans un article récent ⁽¹⁾ qui expose des méthodes nouvelles de prospection des nuages et brouillards.

⁽¹⁾ M. PAUTHENIER et E. BRUN, *Revue Générale de l'Électricité*, 51, 1942, p. 58.

Des applications techniques sont également possibles.

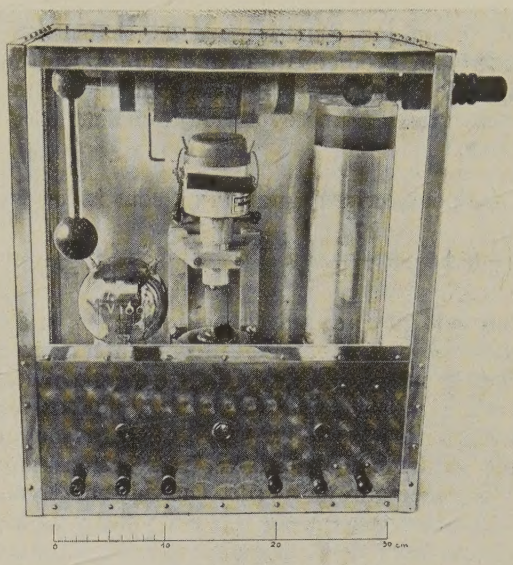


Fig. 3.

Les recherches précédentes ont été faites aux Laboratoires de Bellevue.

Manuscrit reçu le 2 mars 1942.

LES ÉCOULEMENTS LINÉAIRES DES GAZ PARFAITS

Par JEAN VILLEY.

Pour l'étude des écoulements permanents à une dimension [où l'on considère l'état (p, v, T) et la vitesse u du gaz comme des fonctions définies d'une seule variable : l'abscisse x comptée le long de l'axe de la canalisation], l'emploi des dérivées logarithmiques est particulièrement commode.

On a, dans le cas des gaz parfaits, les quatre équations ⁽¹⁾

$$\frac{dp}{p} + \frac{dv}{v} = \frac{dT}{T} \quad (\text{équation d'état}), \quad (1)$$

$$\frac{ds}{s} + \frac{du}{u} = \frac{dv}{v} \quad (\text{équation de continuité}), \quad (2)$$

$$\delta q = d(U + pv) + u du \quad (\text{conserv. de l'énergie}), \quad (3)$$

$$u du = -v dp - \delta w \quad (\text{décoordination}). \quad (4)$$

⁽¹⁾ Où $ds = s'(x) dx$ représente la variation de section sur le parcours dx , et où $\delta q = q(x) dx$ et $\delta w = w(x) dx$ représentent les quantités d'énergie thermique acquises par l'unité de masse du gaz, sur le même parcours dx , par apport de chaleur et par décoordination d'énergie mécanique.

En utilisant $U + pv = CT$, et en posant

$$\gamma = \frac{C}{c} \quad \text{et} \quad k = \frac{u^2}{2b^2} = \frac{u^2}{\gamma RT},$$

on en tire facilement

$$\frac{du}{u} = -\frac{1}{1-k} \frac{ds}{s} + k \frac{\gamma-1}{1-k} \frac{\delta q}{u^2} + k \frac{\gamma}{1-k} \frac{\delta w}{u^2}, \quad (5)$$

$$\frac{dv}{v} = -\frac{k}{1-k} \frac{ds}{s} + k \frac{\gamma-1}{1-k} \frac{\delta q}{u^2} + k \frac{\gamma}{1-k} \frac{\delta w}{u^2}, \quad (6)$$

$$\frac{dT}{T} = k \frac{\gamma-1}{1-k} \frac{ds}{s} + k \frac{\gamma-1}{1-k} (1-k\gamma) \frac{\delta q}{u^2} - k^2 \gamma \frac{\gamma-1}{1-k} \frac{\delta w}{u^2}, \quad (7)$$

$$\frac{dp}{p} = \frac{k\gamma}{1-k} \frac{ds}{s} - k^2 \gamma \frac{\gamma-1}{1-k} \frac{\delta q}{u^2} - k \gamma \frac{1+k(\gamma-1)}{1-k} \frac{\delta w}{u^2}. \quad (8)$$

Ces expressions permettent de retrouver immédiatement quantité de résultats importants et utiles.

1. On observe que le coefficient de δq dans l'expression de dT est négatif pour les valeurs de k

comprises entre $\frac{1}{\gamma}$ et 1 : autrement dit, dans ce domaine de vitesses (ou plus exactement de rapports entre la vitesse et la température), il y a inversion de l'effet thermique d'un apport de chaleur. Si l'on considère un écoulement cylindrique à frottements négligeables ($ds = \delta w = 0$), l'écoulement impose, pour ces vitesses, une évolution à chaleur spécifique négative.

2. On peut écrire l'équation (5) sous la forme

$$d\left(\frac{1}{2}u^2\right) = -\frac{u^2}{1-k}\frac{ds}{s} + k\frac{\gamma-1}{1-k}\delta q + k\frac{\gamma}{1-k}\delta w, \quad (9)$$

où l'on voit que, aux vitesses subsoniques, la décoordination δw (toujours positive) intervient pour provoquer un accroissement de l'énergie cinétique. Cela n'a rien de paradoxal, car, si l'on se reporte à l'équation (4), elle peut avoir, outre son action directe évidemment négative, une action indirecte par l'intermédiaire de $-vdp$. On voit effectivement, sur l'équation (8), qu'elle introduit un terme négatif dans le gradient de pression : le travail des pressions dont elle exige ainsi l'intervention l'emporte sur une action directe, du moins aux vitesses subsoniques.

3. Un apport de chaleur ($\delta q > 0$) n'intervient dans la variation d'énergie cinétique qu'indirectement par l'intermédiaire de $-vdp$. Cela n'empêche pas toutefois que l'on peut transformer cette chaleur en énergie interne, et celle-ci en énergie cinétique, sans qu'il y ait là rien de paradoxal, car l'écoulement lui-même introduit le facteur d'anisotropie indispensable pour pouvoir espérer cette orientation partielle de l'énergie cinétique moléculaire. Les équations (5) à (8) fournissent tous les éléments nécessaires pour l'étude des profils à donner aux tuyères thermopropulsives dans lesquelles on obtient cette orientation.

4. En faisant $\delta q = \delta w = 0$, on obtient les lois des écoulements isentropiques et la théorie élémentaire de la tuyère de Laval. En gardant les termes en $\frac{\delta w}{u^2}$, on aura de plus les corrections relatives aux frottements dans le divergent ($ds > 0$).

5. En faisant $ds = 0$, on a des formules immédiatement applicables au calcul des canalisations cylindriques, car δw y est connu par les études expérimentales des pertes de charge dans les cana-

lisations. Pour les écoulements turbulents, elles aboutissent à la loi générale

$$\frac{\delta w}{u^2} = \frac{0,1582}{d^{1,25}} \frac{\nu^{0,25}}{u^{0,25}} dx,$$

où d représente le diamètre du tuyau et ν la viscosité cinématique μ/ρ du gaz.

Les équations mêmes indiquent d'ailleurs quelles valeurs il faut donner à δq par rapport à δw pour obtenir des évolutions thermodynamiques déterminées; par exemple :

1° Pour obtenir un écoulement à vitesse (donc aussi densité) constante

$$k\frac{\gamma-1}{1-k}\frac{\delta q}{u^2} + k\frac{\gamma}{1-k}\frac{\delta w}{u^2} = 0 \quad \text{ou} \quad \delta q = -\frac{\gamma}{\gamma-1}\delta w;$$

2° Pour obtenir un écoulement isotherme

$$k\frac{\gamma-1}{1-k}(1-k\gamma)\frac{\delta q}{u^2} - k^2\gamma\frac{\gamma-1}{1-k}\frac{\delta w}{u^2} = 0$$

$$\text{ou} \quad \delta q = k\frac{\gamma}{1-k\gamma}\delta w;$$

3° Pour obtenir un écoulement isobare

$$-k^2\gamma\frac{\gamma-1}{1-k}\frac{\delta q}{u^2} - k\gamma\frac{1+k(\gamma-1)}{1-k}\frac{\delta w}{u^2}$$

$$\text{ou} \quad \delta q = -\frac{1+k(\gamma-1)}{k(\gamma-1)}\delta w.$$

6. Si l'on fait $ds = \delta q = 0$, on retrouve les résultats connus des écoulements cylindriques adiabatiques. La pression et la température varient dans le même sens, qui est opposé à celui de la vitesse (et du volume spécifique). La vitesse va en croissant si elle est subsonique ($k < 1$) et en diminuant si elle est supersonique, puisque δw est toujours positif. Cette condition $\delta w > 0$ n'est pas autre chose que la condition $ds > 0$ imposée aux évolutions adiabatiques, puisque la variation d'entropie est ici

$$dS = \frac{dw}{T}.$$

7. Dans tous les cas, les équations (5) à (8) permettent de calculer de proche en proche l'écoulement en fonction des déplacements dx , si l'on connaît en chaque endroit δw et δq , et si l'on connaît en un point quelconque l'état (p_0, T_0 ; v_0 est alors déterminé par l'équation d'état) et la vitesse u_0 . Si l'une de ces trois données manque et qu'elle est remplacée par une condition imposée ailleurs, il faudra faire les calculs en lui attribuant diverses valeurs hypothétiques, et déterminer par interpolation celle qui satisfait la condition complémentaire.